

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2002 年 2 月 14 日 (14.02.2002)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 02/12208 A1(51) 国際特許分類:  
C09K 11/06, H05B 33/14

(21) 国際出願番号: PCT/JP01/05671

(22) 国際出願日: 2001 年 6 月 29 日 (29.06.2001)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2000-236670 2000 年 8 月 4 日 (04.08.2000) JP  
特願2000-348516  
2000 年 11 月 15 日 (15.11.2000) JP(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): タイ  
ホー工業株式会社 (TAIHO INDUSTRIES, CO., LTD)  
[JP/JP]; 〒108-0074 東京都港区高輪2丁目21番44号  
Tokyo (JP).

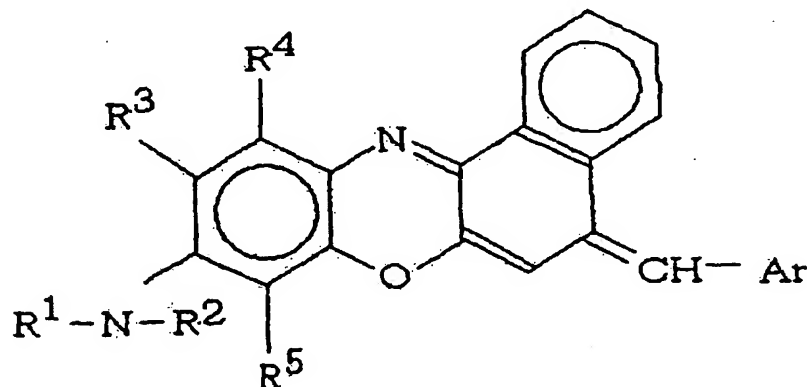
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 仲矢 忠雄  
(NAKAYA, Tadao) [JP/JP]; 〒113-0033 東京都文京区  
本郷二丁目35-16 コータス弓町402号 Tokyo (JP). 山内隆夫 (YAMAUCHI, Takao) [JP/JP]; 〒230-0074 神奈  
川県横浜市鶴見区北寺尾一丁目13-21 Kanagawa (JP).  
犀川知行 (SAIKAWA, Tomoyuki) [JP/JP]; 〒243-0406  
神奈川県海老名市国分北1-33-15 レオパレスBP246  
A館102号 Kanagawa (JP). 田島晶夫 (TAJIMA, Akio)  
[JP/JP]; 〒243-0406 神奈川県海老名市国分北1-33-15  
レオパレスBP246 A館105号 Kanagawa (JP). 毛利英正  
(MORI, Hidemasa) [JP/JP]; 〒246-0034 神奈川県横浜  
市瀬谷区南瀬谷二丁目6-9 Kanagawa (JP).(74) 代理人: 福村直樹 (FUKUMURA, Naoki); 〒160-0023  
東京都新宿区西新宿七丁目18番5号 中央第7西新宿  
ビル401号室 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, CN, JP, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,  
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).添付公開書類:  
— 国際調査報告書2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。(54) Title: NILE-RED LUMINESCENT COMPOUND, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND LUMINESCENT EL-  
EMENT UTILIZING THE SAME

(54) 発明の名称: ナイルレッド系赤色発光化合物、その製造方法及びそれを利用した発光素子



( 1 )

(57) Abstract: A novel nile-red compound (represented by the formula (1)) capable of emitting a nearly crimson red light; a novel process for producing the compound; and a luminescent compound which emits a nearly crimson red color at a high luminance. The nile-red luminescent compound is obtained by converting C=O in a nile-red compound into C=CH-Ar (wherein Ar is a fluorinated aromatic group) and incorporating an electron-donating group into the nile-red skeleton. The novel production process comprises reacting a nile-red dye with an electron-attracting aromatic acetonitrile. The nile-red luminescent compound has a composition containing a nile-red luminescent compound. (1)

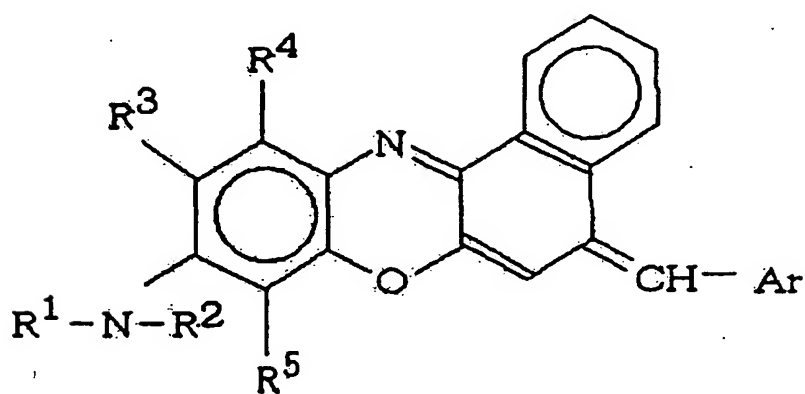
[続葉有]

WO 02/12208 A1



(57) 要約:

深紅に近い赤色発光可能なナイルレッド系新規化合物（式（１））を提供、その新規製造方法を提供、深紅に近い高輝度赤色発光化合物を提供することを目的とする本発明は、ナイルレッド系化合物における  $C=O$  を  $C=CH-Ar$ （ただし  $Ar$  はフッ素含有芳香族基）に変えてなり、かつナイルレッド骨格に電子供与性基を導入してなるナイルレッド系赤色発光化合物、ナイルレッド系色素と電子吸引性芳香族アセトニトリルとを反応させる新規製造方法およびナイルレッド系赤色発光化合物含有の組成物を有するナイルレッド系赤色系発光化合物である。



... (1)

## 明細書

ナイルレッド系赤色発光化合物、その製造方法及びそれを利用した発光素子

### 技術分野

この発明は、ナイルレッド系赤色発光化合物、その製造方法及び発光素子に関し、更に詳しくは、電気的エネルギーを印加すると深紅に近い赤色の発光が高輝度で可能なナイルレッド系赤色発光化合物、その新規な製造方法及びそれを利用した発光素子に関する。

### 背景技術

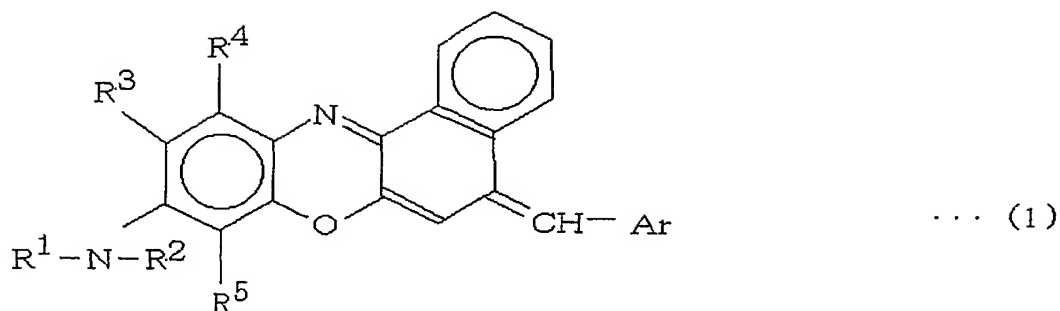
従来、有機電界発光素子（別に有機エレクトロルミネッセンス素子或いは有機EL素子とも称されている。）として種々の有機化合物が提案されている。

しかしながら、赤色発光が可能で、発光輝度が高く、熱及び光等に安定な有機化合物は、未だ開発されていないのが現状である。

この発明の目的は、高い発光輝度であり、及び／又はCIE色度におけるX座標が0.63を超える赤色発光が可能であり、熱及び光等に安定な有機系の赤色発光化合物、その製造方法およびその有機系赤色発光化合物を使用する発光素子を提供することにある。

### 発明の開示

前記課題を解決するための第1の発明は、下記一般式（1）で示される構造を有することを特徴とするナイルレッド系赤色発光化合物である。



但し、式中、 $R^1$ は、炭素数1～5の低級アルキル基を示し、また、 $R^1$ は $R^3$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^6\text{R}^7-$ （ただし、 $-\text{CR}^6\text{R}^7-$ における炭素はベンゼン環に結合し、 $R^6$ 及び $R^7$ は水素原子又は炭素数1～5の低級アルキル基を示し、 $R^6$  および  $R^7$  は、同一であっても相違していても良い。）を形成する。

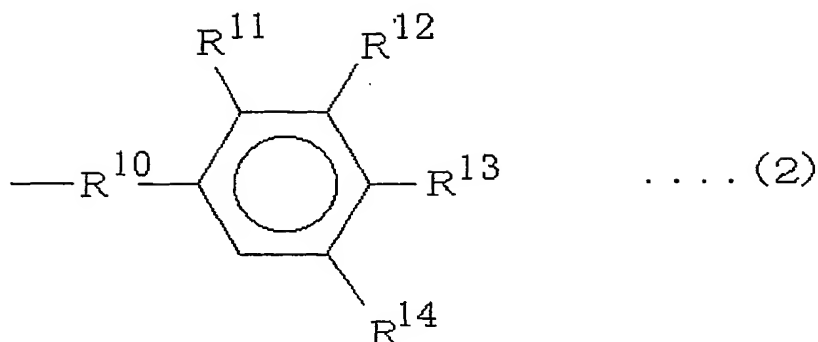
$R^2$ は、炭素数1～5の低級アルキル基を示し、また、 $R^2$ は $R^5$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^8\text{R}^9-$ （ただし、 $-\text{CR}^8\text{R}^9-$ における炭素はベンゼン環に結合し、 $R^8$ 及び $R^9$ は水素原子又は炭素数1～5の低級アルキル基を示し、 $R^8$  および  $R^9$  は、同一であっても相違していても良い。）を形成する。

$R^3$ は、水素原子、 $R^1$ と共同して形成される前記結合、又は、 $R^4$ と共同して隣接するベンゼン環を含んで形成されてなるナフタレン環を示す。

$R^4$ は、水素原子、又は $R^3$ と共同して隣接するベンゼン環を含んで形成されてなるナフタレン環を示す。

$R^5$ は、水素原子、又は前記 $R^2$ と共同して形成される前記結合を示す。

Arは、一般式(2)、(4)及び(5)のいずれかを示す。



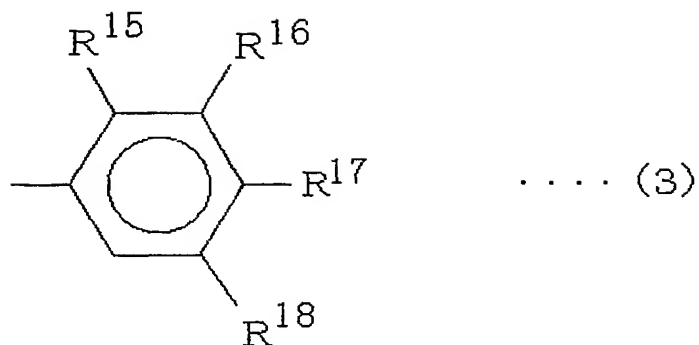
但し、 $R^{10}$  は、炭結合又はメチレン基を示す。

$R^{11}$  は、水素原子、又は $R^{12}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ を示す。

$R^{12}$  は、フッ素原子、シアノ基、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基、前記 $R^{11}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ 、又は $R^{13}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ を示す。

$R^{13}$  は、水素原子、シアノ基、フッ素原子、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基、前記 $R^{12}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ 、又は一般式(3)で示される基を示す。

$R^{14}$  は、 $R^{13}$  が水素原子であるときには水素原子又は炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基を示し、 $R^{13}$  が水素原子以外の基であるときには水素原子を示す。

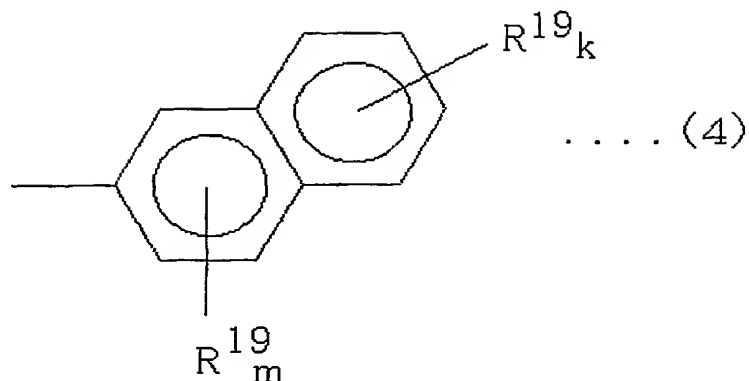


但し、 $R^{15}$  は、水素原子、又は  $R^{16}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。

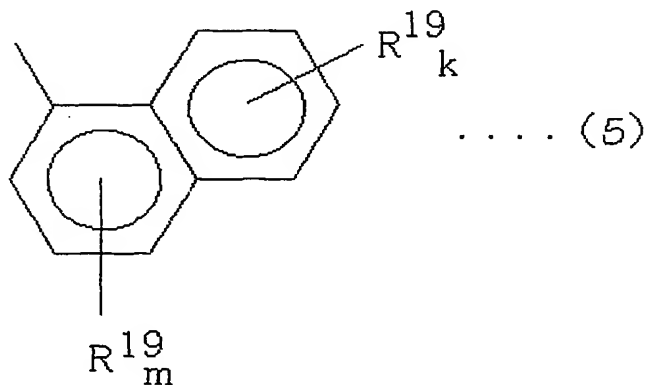
$R^{16}$  は、フッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基、前記  $R^{15}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$ 、又は  $R^{17}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。

$R^{17}$  は、水素原子、シアノ基、フッ素原子、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基、前記  $R^{16}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。

$R^{18}$  は、 $R^{17}$  が水素原子であるときには水素原子又は炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示し、 $R^{17}$  が水素原子以外の基であるときには水素原子を示す。



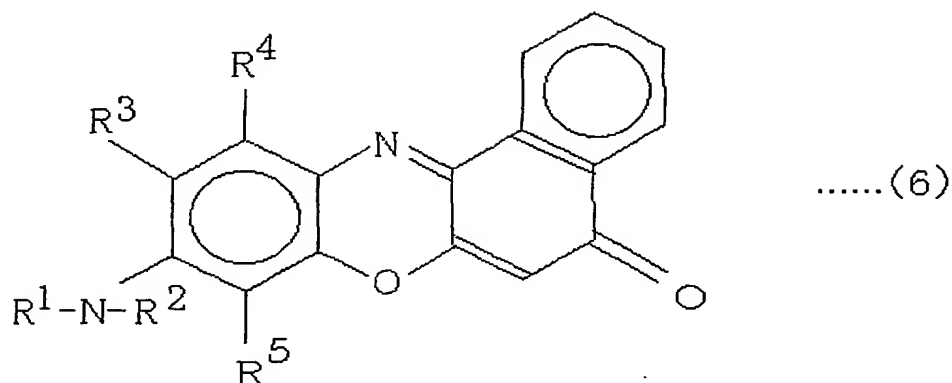
但し、 $R^{19}$  はフッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示す。 $k$  は 1～4 の整数を示し、 $m$  は 1～3 の整数を示す。 $m$  と  $k$  との合計個数の  $R^{19}$  は同一であっても相違していても良い。



但し、 $R^{19}$  はフッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示す。 $k$  は 1～4 の整数を示し、 $m$  は 1～3 の整数を示す。 $m$  と  $k$  との合計個数の  $R^{19}$  は同一であっても相違していても良い。

前記課題を解決するための他の手段は、一般式 (6) で示されるナイルレッド系色素化合物と一般式 (7) で示される電子吸引性芳香族系アセトニトリルとを

反応させることを特徴とする前記一般式（１）で示されるナイルレッド系赤色発光化合物の製造方法である。



但し、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  及び  $R^5$  は前記請求項 1 におけるのと同様の意味を示す。



但し、 $Ar$  は、前記請求項 1 におけるのと同様の意味を示す。

前記課題を解決するためのさらに他の手段は、一対の電極間に、前記一般式（１）で示されるナイルレッド系赤色発光化合物を含有する発光層を設けてなることを特徴とする発光素子である。



前記発光素子は、その好適な態様において、一対の電極における一方の電極である陽極と前記発光層との間にホール輸送層が介装されて成り、

前記発光素子は、その好適な態様において、前記発光層がナイルレッド系赤色発光化合物とホスト色素とを含有して成り、

前記発光素子は、その好適な態様において、前記発光層及びホール輸送層が蒸着法により形成されて成り、

前記発光素子は、その好適な態様において、前記発光層が前記ナイルレッド系赤色発光化合物と電子輸送性物質とホール輸送性高分子とを含有して成り、

前記発光素子は、その好適な態様において、前記発光層が塗布法により形成されて成り、

前記発光素子は、その好適な態様において、前記発光層が、ジフェニルビニルビフェノール系青色発光化合物及びスチルベン系青色発光化合物よりなる群から選択される少なくとも一種と、クマリン系緑色発光化合物、インドフェノール系緑色発光化合物及びインジゴ系緑色発光化合物よりなる群から選択される少なくとも一種とを含有してなる。

#### 図面の簡単な説明

図1は、実施例1におけるナイルレッド系赤色発光化合物Aの<sup>1</sup>H-NMRチャートである。

図2は、実施例1におけるナイルレッド系赤色発光化合物AのIRチャートである。

図3は、実施例1におけるナイルレッド系赤色発光化合物AのIRチャートである。

図4は、実施例16におけるナイルレッド系赤色発光化合物のNMRチャートである。

図5は、実施例17におけるナイルレッド系赤色発光化合物のNMRチャートである。

図6は、実施例10におけるナイルレッド系赤色発光化合物のNMRチャート

である。

図 7 は、実施例 18 におけるナイルレッド系赤色発光化合物の NMR チャートである。

図 8 は、実施例 19 におけるナイルレッド系赤色発光化合物の NMR チャートである。

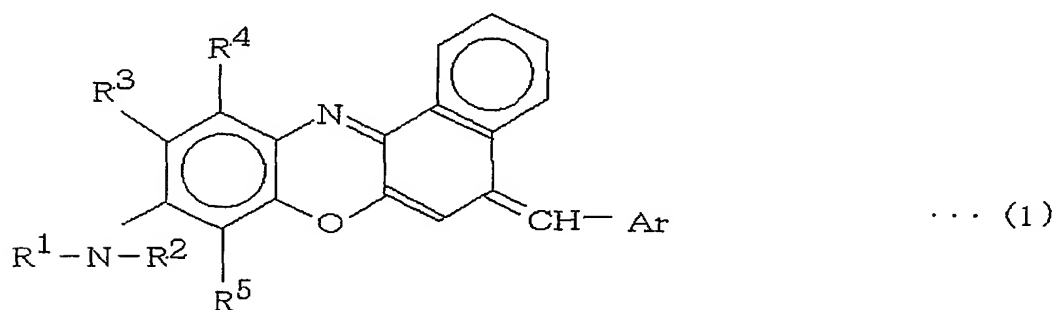
図 9 は、実施例 20 における 6-アミノ-3-(ジイソプロピルアミノ)-2-ニトロフェノールの NMR チャートである。

図 10 は、実施例 20 におけるナイルレッド系誘導体の NMR チャートである。

図 11 は、実施例 20 におけるナイルレッド系赤色発光化合物の NMR チャートである。

発明を実施するための最良の形態

この発明に係るナイルレッド系赤色発光化合物は一般式 (1) で示される。



一般式 (1) 中、 $R^1$  は、炭素数 1~5 の低級アルキル基であり得る。 $R^1$  にて示される低級アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基及びペンチル基を挙げることができる。

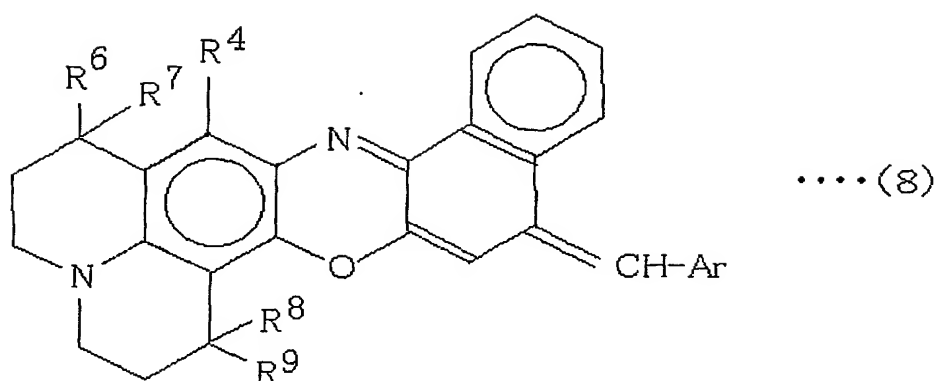
前記 $R^2$ は、炭素数1～5の低級アルキル基であり得る。 $R^2$ にて示される低級アルキル基としては、前記 $R^1$ の場合と同様である。 $R^1$ と $R^2$ とは、同じ低級アルキル基であっても、異なる低級アルキル基であっても良い。

前記 $R^1$ は、 $R^3$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^6\text{R}^7-$ （ただし、 $-\text{CR}^6\text{R}^7-$ における炭素はベンゼン環に結合し、 $R^6$ 及び $R^7$ は水素原子又は炭素数1～5の低級アルキル基を示し、 $R^6$  および  $R^7$  は、同一であっても相違していても良い。）を形成する。

前記 $R^1$ 及び $R^2$ が低級アルキル基である場合に、好適な $-\text{NR}^1\text{R}^2$ として、ジエチルアミノ基、ジ- $n$ -プロピルアミノ基、ジ- $i$ -プロピルアミノ基、ブチル基等を挙げることができる。

前記 $R^2$ は、 $R^5$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^8\text{R}^9-$ （ただし、 $-\text{CR}^8\text{R}^9-$ における炭素はベンゼン環に結合し、 $R^8$ 及び $R^9$ は水素原子又は炭素数1～5の低級アルキル基を示し、 $R^8$  および  $R^9$  は、同一であっても相違していても良い。）を形成する。

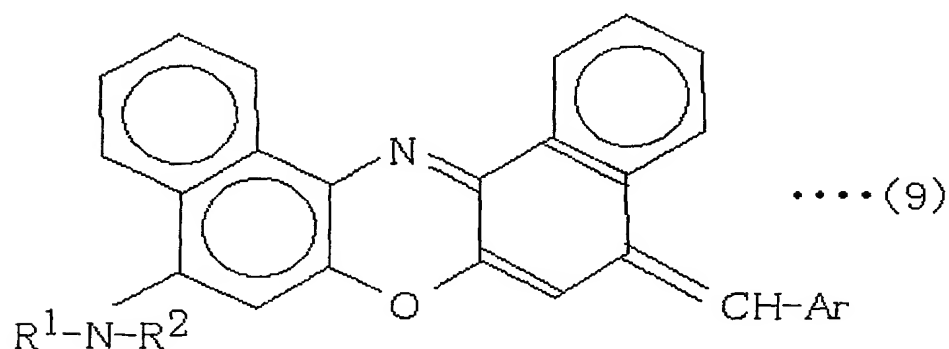
前記 $R^1$ が $R^3$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^6\text{R}^7-$ であり、前記 $R^2$ が $R^5$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^8\text{R}^9-$ であるときの一般式（1）は、一般式（8）で示すことができる。



この一般式 (8) における  $R^4$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$  及び  $Ar$  は、前記と同様の意味を示す。

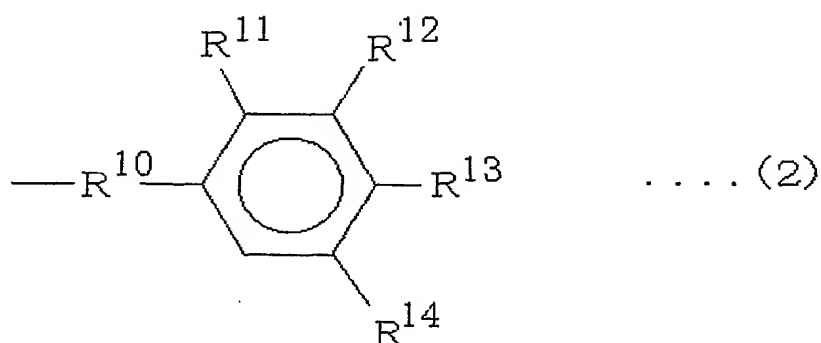
一般式 (1) 中、 $R^3$  および  $R^4$  は、共に水素原子であり、又は共同して隣接するベンゼン環を含んでナフタレン環を形成することができる。 $R^3$  および  $R^4$  が共同して隣接するベンゼン環を含んでナフタレン環を形成してなる赤色発光化合物は、一般式 (9) で示される。

【化1】



前記一般式 (9) における  $R^1$ 、 $R^2$  及び  $A_r$  は、前記と同様の意味を表す。

また前記一般式 (1) における  $A_r$  は、一般式 (2)、(4) 又は (5) で示される構造を有する。



但し、 $R^{10}$  は、炭結合又はメチレン基を示す。

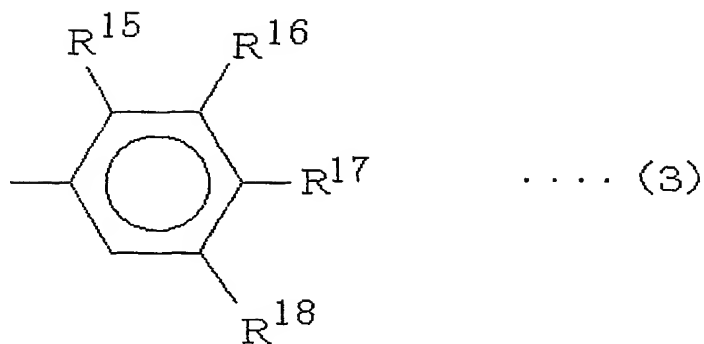
$R^{11}$  は、水素原子、又は  $R^{12}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。

$R^{12}$  は、フッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基、前記  $R^{11}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$ 、又は  $R^{13}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。

$R^{13}$  は、水素原子、シアノ基、フッ素原子、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基、前記  $R^{12}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$ 、又は一般式 (3) で示される基を示す。

$R^{14}$  は、 $R^{13}$  が水素原子であるときには水素原子又は炭素数 1～5 のフッ

素原子含有低級アルキル基を示し、 $R^{13}$  が水素原子以外の基であるときには水素原子を示す。



但し、 $R^{15}$  は、水素原子、又は $R^{16}$  と共同して形成される $-CF_2-O-$   
 $CF_2-$ を示す。

$R^{16}$  は、フッ素原子、シアノ基、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基、前記 $R^{15}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ 、又は $R^{17}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ を示す。

$R^{17}$  は、水素原子、シアノ基、フッ素原子、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基、前記 $R^{16}$  と共同して形成される $-CF_2-O-CF_2-$ を示す。

$R^{18}$  は、 $R^{17}$  が水素原子であるときには水素原子又は炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基を示し、 $R^{17}$  が水素原子以外の基であるときには水素原子を示す。

前記 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{16}$ 、及び $R^{17}$  で示される炭素数1～5のフッ素原

子含有低級アルキル基としては、フッ素原子含有メチル基例えば、トリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、及びモノフルオロメチル基、フッ素原子含有エチル基例えばペンタフルオロエチル基、フッ素原子含有プロピル基例えばヘキサフルオロプロピル基、フッ素原子含有ペンチル基等を挙げることができる。これらの中でも好ましいフッ素原子含有低級アルキル基はフッ素原子含有メチル基である。

前記一般式 (1) 又は (9) 中の Ar において、 $R^{10}$  が単結合又はメチレン基である場合に、好適な  $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  の組合せ例を、表 1 に示す。

【表 1】

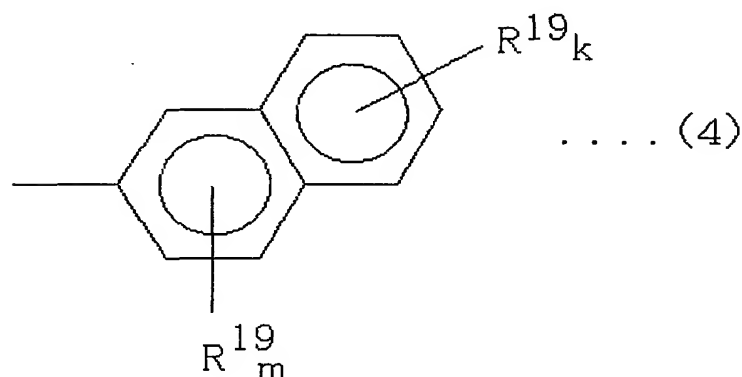
組合せ例	$R^{11}$	$R^{12}$	$R^{13}$	$R^{14}$
1	-H	$-\text{CF}_3$	-H	$-\text{CF}_3$
2	-H	-F	$-\text{CF}_3$	-H
3	-H	$-\text{CF}_3$	-F	-H
4	-H	$-\text{CF}_3$	-CN	-H
5	-H	-CN	$-\text{CF}_3$	-H
6	-H	-F	-CN	-H
7	-H	-CN	-F	-H
8	-H	-F	$-\text{CF}_3$	-H
9	$-\text{CF}_2-\text{O}-\text{CF}_2-$		-H	-H
10	-H	$-\text{CF}_2-\text{O}-\text{CF}_2-$		-H
11	-H	一般式 (3)	-H, $-\text{CF}_3$ , -CN, 又は-H	-H
12	-F	-F	$-\text{CF}_3$	-H
13	$-\text{CF}_3$	-H	$-\text{CF}_3$	-H

前記表 1 に示される好適例の外に、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-

ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 4-ジフルオロフェニル基、及び3, 5-ジフルオロフェニル基等のフッ化フェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、及び3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基等のトリフルオロメチルフェニル基、及び4-フルオロ-3-トリフルオロメチルフェニル基、6-フルオロ-2-トリフルオロメチルフェニル基等のフルオロトリフルオロメチルフェニル基等をArの好適例として挙げることができる。

Arの1つは、一般式(4)で示される。

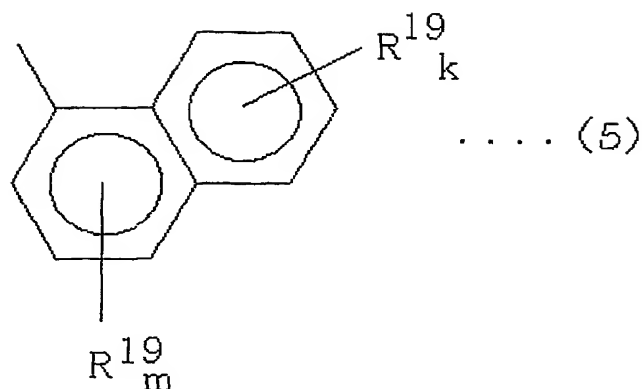
【化2】



但し、 $R^{19}$ はフッ素原子、シアノ基、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基を示す。 $k$ は1～4の整数を示し、 $m$ は1～3の整数を示す。 $m$ と $k$ との合計個数の $R^{19}$ は同一であっても相違していても良い。

Arの1つは一般式(5)で示される。





但し、 $R^{19}$  はフッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示す。 $k$  は 1～4 の整数を示し、 $m$  は 1～3 の整数を示す。 $m$  と  $k$  との合計個数の  $R^{19}$  は同一であっても相違していても良い。

一般式 (4) 又は (5) で示されるナフチル基は、フッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキルと言う電子吸引性基を有しているので、ナイルレッド骨格における  $\pi$  電子とフッ素系の置換基又はシアノ基とが超共役効果を発揮して赤色発光を容易にする。

ナフチル基に結合する炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基は、一般式 (2) における炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基と同様である。ナフチル基に結合する炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基の中でも、トリフルオロメチル基が好適である。

一般式 (4) で示されるナフチル基の内、1-ナフチル基に関しては、例えば、1 個のトリフルオロメチル基が 2 位、3 位、4 位、5 位、6 位、7 位又は 8 位に結合する (トリフルオロメチル) - 1-ナフチル基、フッ素原子が 2 位、3 位、4 位、5 位、6 位、7 位又は 8 位に結合するフルオロ - 1-ナフチル基、2 個のトリフルオロメチル基が 2 位及び 3 位、2 位及び 4 位、2 位及び 5 位、2 位及び 6 位、2 位及び 7 位、2 位及び 8 位、3 位及び 4 位、3 位及び 5 位、3 位及び

6 位、3 位及び 7 位、3 位及び 8 位、4 位及び 5 位、4 位及び 6 位、4 位及び 7 位、4 位及び 8 位、5 位及び 6 位、5 位及び 7 位、5 位及び 8 位、6 位及び 7 位、6 位及び 8 位、又は 7 位及び 8 位に結合するビス（トリフルオロメチル）－1－ナフチル基、2 個のフッ素原子が 2 位及び 3 位、2 位及び 4 位、2 位及び 5 位、2 位及び 6 位、2 位及び 7 位、2 位及び 8 位、3 位及び 4 位、3 位及び 5 位、3 位及び 6 位、3 位及び 7 位、3 位及び 8 位、4 位及び 5 位、4 位及び 6 位、4 位及び 7 位、4 位及び 8 位、5 位及び 6 位、5 位及び 7 位、5 位及び 8 位、6 位及び 7 位、6 位及び 8 位、又は 7 位及び 8 位に結合するジフルオロ－1－ナフチル基、3 個のトリフルオロメチル基が 2 位、3 位及び 4 位、2 位、3 位及び 5 位、2 位、3 位及び 6 位、2 位、3 位及び 7 位、2 位、3 位及び 8 位、2 位、4 位及び 5 位、2 位、4 位及び 6 位、2 位、4 位及び 7 位、2 位、4 位及び 8 位、2 位、5 位及び 6 位、2 位、5 位及び 7 位、2 位、5 位及び 8 位、2 位、6 位及び 7 位、2 位、5 位及び 8 位、3 位、4 位及び 5 位、3 位、4 位及び 6 位、3 位、4 位及び 7 位、3 位、4 位及び 8 位、3 位、5 位及び 6 位、3 位、5 位及び 7 位、3 位、5 位及び 8 位、3 位、6 位及び 7 位、3 位、6 位及び 8 位、4 位、7 位及び 8 位、4 位、5 位及び 6 位、4 位、5 位及び 7 位、4 位、5 位及び 8 位、4 位、6 位及び 7 位、4 位、6 位及び 8 位、4 位、7 位及び 8 位、5 位、6 位及び 7 位、5 位、6 位及び 8 位、5 位、7 位及び 8 位、並びに 6 位、7 位及び 8 位に結合するトリ（トリフルオロメチル）－1－ナフチル基、3 個のフッ素原子が 2 位、3 位及び 4 位、2 位、3 位及び 5 位、2 位、3 位及び 6 位、2 位、3 位及び 7 位、2 位、3 位及び 8 位、2 位、4 位及び 5 位、2 位、4 位及び 6 位、2 位、4 位及び 7 位、2 位、4 位及び 8 位、2 位、5 位及び 6 位、2 位、5 位及び 7 位、2 位、5 位及び 8 位、3 位、4 位及び 5 位、3 位、4 位及び 6 位、3 位、4 位及び 7 位、3 位、4 位及び 8 位、3 位、5 位及び 6 位、3 位、5 位及び 7 位、3 位、5 位及び 8 位、3 位、6 位及び 7 位、3 位、6 位及び 8 位、4 位、7 位及び 8 位、4 位、5 位及び 6 位、4 位、5 位及び 7 位、4 位、5 位及び 8 位、4 位、6 位及び 7 位、4 位、6 位及び 8 位、4 位、7 位及び 8 位、5 位、6 位及び 7 位、5 位、6 位及び 8 位、5 位、7 位

及び8位、並びに、6位、7位及び8位に結合するトリフルオロ-1-ナフチル基、並びに2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-ヘプタフルオロ-1-ナフチル基を挙げることができる。

一般式(5)で示されるナフチル基の内、例えば、1個のトリフルオロメチル基が1位、3位、4位、5位、6位、7位又は8位に結合する(トリフルオロメチル)-2-ナフチル基、フッ素原子が1位、3位、4位、5位、6位、7位又は8位に結合するフルオロ-2-ナフチル基、2個のトリフルオロメチル基が1位及び3位、1位及び4位、1位及び5位、1位及び6位、1位及び7位、1位及び8位、3位及び4位、3位及び5位、3位及び6位、3位及び7位、3位及び8位、4位及び5位、4位及び6位、4位及び7位、4位及び8位、5位及び6位、5位及び7位、5位及び8位、6位及び7位、6位及び8位、又は7位及び8位に結合するビス(トリフルオロメチル)-2-ナフチル基、2個のフッ素原子が1位及び3位、1位及び4位、1位及び5位、1位及び6位、1位及び7位、1位及び8位、3位及び4位、3位及び5位、3位及び6位、3位及び7位、3位及び8位、4位及び5位、4位及び6位、4位及び7位、4位及び8位、5位及び6位、5位及び7位、5位及び8位、6位及び7位、6位及び8位、又は7位及び8位に結合するジフルオロ-2-ナフチル基、3個のトリフルオロメチル基が1位、3位及び4位、1位、3位及び5位、1位、3位及び6位、1位、3位及び7位、1位、3位及び8位、1位、4位及び5位、1位、4位及び6位、1位、4位及び7位、1位、4位及び8位、1位、5位及び6位、1位、5位及び7位、1位、5位及び8位、1位、6位及び7位、1位、5位及び8位、3位、4位及び5位、3位、4位及び6位、3位、4位及び7位、3位、4位及び8位、3位、5位及び6位、3位、5位及び7位、3位、5位及び8位、3位、6位及び7位、3位、6位及び8位、4位、7位及び8位、4位、5位及び6位、4位、5位及び7位、4位、5位及び8位、4位、6位及び7位、4位、6位及び8位、4位、7位及び8位、5位、6位及び7位、5位、6位及び8位、5位、7位及び8位、並びに6位、7位及び8位に結合するトリ(トリフルオロ

メチル) - 2 - ナフチル基、3 個のフッ素原子が 1 位、3 位及び 4 位、1 位、3 位及び 5 位、1 位、3 位及び 6 位、1 位、3 位及び 7 位、1 位、3 位及び 8 位、1 位、4 位及び 5 位、1 位、4 位及び 6 位、1 位、4 位及び 7 位、1 位、4 位及び 8 位、1 位、5 位及び 6 位、1 位、5 位及び 7 位、1 位、5 位及び 8 位、1 位、6 位及び 7 位、1 位、5 位及び 8 位、3 位、4 位及び 5 位、3 位、4 位及び 6 位、3 位、4 位及び 7 位、3 位、4 位及び 8 位、3 位、5 位及び 6 位、3 位、5 位及び 7 位、3 位、5 位及び 8 位、3 位、6 位及び 7 位、3 位、6 位及び 8 位、4 位、7 位及び 8 位、4 位、5 位及び 6 位、4 位、5 位及び 7 位、4 位、5 位及び 8 位、4 位、6 位及び 7 位、4 位、6 位及び 8 位、4 位、7 位及び 8 位、5 位、6 位及び 7 位、5 位、6 位及び 8 位、5 位、7 位及び 8 位、並びに 6 位、7 位及び 8 位に結合するトリフルオロ - 2 - ナフチル基、並びに 1, 3, 4, 5, 6, 7, 8 - ヘプタフルオロ - 2 - ナフチル基を挙げることができる。

一般式 (1) で示されるナイルレッド系赤色発光化合物は、 $-NR^1R^2$  が電子供与性基であり、 $-Ar$  が電子吸引性基であるから、ナイルレッド骨格における  $\pi$  電子雲が広がり、超共役効果が発揮され、僅かのエネルギーにより赤色発光が容易になる。この発明にかかる新規ナイルレッド系赤色発光化合物は、 $R^1-N-R^2$  という電子供与性基がナイルレッド骨格における  $\pi$  電子雲に電子を供与し、芳香族系電子吸引性基である  $Ar$  により電子を吸引すると言う構造により特徴付けられる。このナイルレッド系赤色発光化合物は、安定したナイルレッド骨格構造を有するので、化学的に安定となり、過酷な使用条件下においても、劣化しないという特異性を発揮する。

一般式 (1) で示されるナイルレッド系赤色発光化合物は、次のようにして製造することができる。

すなわち、一般式 (6) で示されるナイルレッド系化合物と一般式 (7) で示される電子吸引性芳香族系アセトニトリルとを反応させる。

前記ナイルレッド系化合物と前記電子吸引性芳香族系アセトニトリルとは、溶媒中で加熱することにより容易に反応する。該溶媒としては、無水酢酸、酢酸、炭素数が5以下である酸無水物、ベンゼン及びトルエン等の芳香族系溶剤、ジオキサン等を使用することができる。反応温度は、通常100～250℃、好ましくは100～170℃である。反応の終了後には、常法に従って精製操作及び分離操作をすることにより目的とするナイルレッド系赤色発光化合物を得ることができる。

この発明に係るナイルレッド系赤色発光化合物は、単にナイルレッド系化合物と前記電子吸引性芳香族系アセトニトリルとを加熱するだけで容易に製造されることができる。このような簡便なナイルレッド系赤色発光化合物の製造方法は、工業的な製造方法である。

この発明に係るナイルレッド系赤色発光化合物は、発光素子に使用される。この発光素子は、陽極と、ナイルレッド系赤色発光化合物含有の発光層と、この発光層の表面に形成された陰極とを有して成る構造を有する。この発光素子は、陽極及び陰極の間に、前記ナイルレッド系赤色発光化合物含有の発光層を有している限り様々のタイプの構造を採用することができる。この発光素子として、例えば、陽極と陰極との間に、電子を輸送する電子輸送性物質、ナイルレッド系赤色発光化合物、及びホールを輸送するホール輸送性物質を含有する発光層を有する一層型有機発光素子、陽極と陰極との間に、ホール輸送性物質を含有するホール輸送層と、ナイルレッド系赤色発光化合物含有の電子輸送性発光層とを積層して成る二層型有機発光素子（例えば、陽極と陰極との間に、ホール輸送層と、ゲスト色素としてナイルレッド系赤色発光化合物及びホスト色素を含有する発光層とを積層して成る二層型色素ドーピング型発光素子）、陽極と陰極との間に、電子輸送性物質を含有する電子輸送層と、前記ナイルレッド系赤色発光化合物を含有するホール輸送性発光層とを積層して成る二層型有機発光素子（例えば、陽極と陰極

との間に、電子輸送層と、ゲスト色素としてナイルレッド系赤色発光化合物及びホスト色素とを含有する発光層とを積層して成る二層型色素ドープ型有機発光素子)、陽極と陰極との間に、ホール輸送層、ナイルレッド系赤色発光化合物含有の発光層及び電子輸送層を積層して成る三層型有機発光素子を挙げることができる。上記各種の有機発光素子において、一層の発光層、並びに二層及び三層からなる積層体を有機層と称されることがある。

上記発光素子は通常基板上に形成されることができる。この基板としては、例えばガラス、プラスチック等の透明基板を挙げることができる。

前記陽極としては、仕事関数が大きくて透明であり、電圧を印加することにより前記膜にホールを注入することができる限り様々の素材を採用することができる。具体的には、陽極として、ITO、 $\text{In}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{CdO}$ 等、及びそれらの化合物等の無機透明導電材料、及びポリアニリン等の導電性高分子材料等で形成することができる。

この陽極の膜厚は、通常、 $100 \sim 200 \mu\text{m}$ であり、表面抵抗が $10 \sim 20 \Omega/\square$ である。

この陽極は、前記基板上に、化学気相成長法、スプレーパイロリシス、真空蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタ法、イオンビームスパッタ法、イオンプレーティング法、イオンアシスト蒸着法、その他の方法により形成されることができる。

前記陰極は、仕事関数の小さな物質が採用され、例えば、 $\text{MgAg}$ 、アルミニウム合金、金属カルシウム等の、金属単体又は金属の合金で形成されることができる。好適な陰極はアルミニウムと少量のリチウムとの合金電極である。この陰極は、例えば基板の上に形成された前記発光層を含む有機層の表面に、蒸着技術

により、容易に形成することができる。

前記電子輸送性物質としては、例えば、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(BND)、及び2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール等のオキサジアゾール誘導体、並びに2, 5-ビス(5'-tert-ブチル-2'-ベンゾキサゾリル)チオフェン等を挙げることができる。また、電子輸送性物質として、例えばキノリノールアルミ錯体(A1q3)、ベンゾキノリノールベリリウム錯体(Bebq2)等の金属錯体系材料を好適に使用することもできる。

前記ホール輸送物質としては、トリフェニルアミン系化合物例えばN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(TPD)、及び $\alpha$ -NPD等、ヒドラゾン系化合物、スチルベン系化合物、複素環系化合物、 $\pi$ 電子系スターバースト正孔輸送物質等を挙げることができる。

この発光素子における有機層は、蒸着法、並びに塗布法例えばスピncast法、コート法及びディップ法のいずれかにより形成されることができる。

蒸着法及び塗布法のいずれを採用するにしても、電極と有機層との間に、バッファ層を介装するのが好ましい。

前記陰極と前記有機層との間に形成される前記バッファ層を形成することのできる材料として、例えば、フッ化リチウム等のアルカリ金属化合物、フッ化マグネシウム等のアルカリ土類金属化合物、酸化アルミニウム等の酸化物、4, 4'-ビスカルバゾールビフェニル(Cz-TPD)を挙げることができる。また、例えばITO等の陽極と有機層との間に形成されるバッファ層を形成する材料として、例えばm-MTDATA(4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)、フタロシアニン、ポリアニリン、ポリ

チオフェン誘導体、無機酸化物例えば酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム、フッ化リチウムを挙げることができる。これらのバッファ層は、その材料を適切に選択することにより、発光素子の駆動電圧を低下させることができ、発光の量子効率を改善することができ、発光輝度の向上を達成することができる。

蒸着法により形成することのできる好適な発光素子は、蒸着法により形成されたITO等の陽極の表面に、好適にはバッファ層を介して蒸着法により形成されたホール輸送層と、このホール輸送層の表面に、蒸着により形成されたところの、Alq<sub>3</sub>、Bebq<sub>2</sub>等のホスト色素とゲスト色素であるナイルレッド系赤色発光化合物とを含有する電子輸送性発光層と、この電子輸送性発光層の表面、好適にはバッファ層を介して蒸着法により形成された陰極とを積層して成る。

この発光素子における電子輸送性発光層に含まれるナイルレッド系赤色発光化合物の含有量は、通常の場合、ホスト色素に対して0.001～50重量%、好ましくは0.01～10重量%である。ナイルレッド系赤色発光化合物の含有量が前記範囲内にあると、特に赤色発光が鮮やかに起こる。

この電子輸送性発光層の厚みは、通常、30～300nm、好ましくは50～200nmである。この電子輸送性発光層の厚みが前記範囲にあると低電圧で高輝度の発光が可能に成るという利点がある。

塗布法により形成することのできる好適な発光素子は、基板の表面に蒸着法により形成されたITP等の陽極と、この陽極の表面に、ナイルレッド系赤色発光化合物と電子輸送性材料とホール輸送性高分子とを含有する溶液を塗布し、乾燥することにより形成されて成る有機層と、この有機層の表面に、好適にはバッファ層を介して蒸着により形成されて成る陰極とを積層して成る。



有機層中に含まれるナイルレッド系赤色発光化合物の含有量は、通常の場合、0.01～10重量%、好ましくは0.1～5重量%である。ナイルレッド系赤色発光化合物の含有量が前記範囲内にあると、特に赤色発光が鮮やかに起こる。

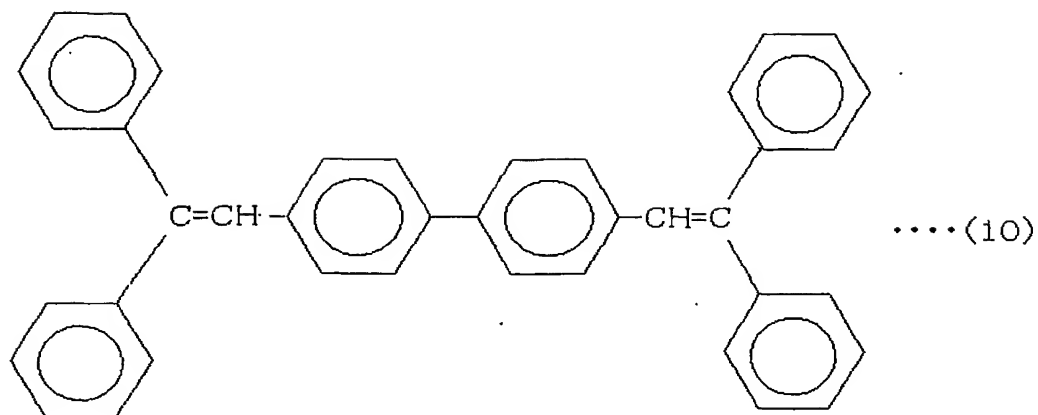
ホール輸送性高分子としては、例えばポリビニルカルバゾール、ポリ(3-アルキレンチオフェン)が挙げられる。また、この有機層中には、増感剤としてルブレンが含有されているのが好ましく、特に、ルブレンとAlq3とが含有されているのが好ましい。

この電子輸送性発光層の厚みは、通常、30～300nm、好ましくは50～200nmである。この電子輸送性発光層の厚みが前記範囲にあると低電圧で高輝度に成るという利点がある。

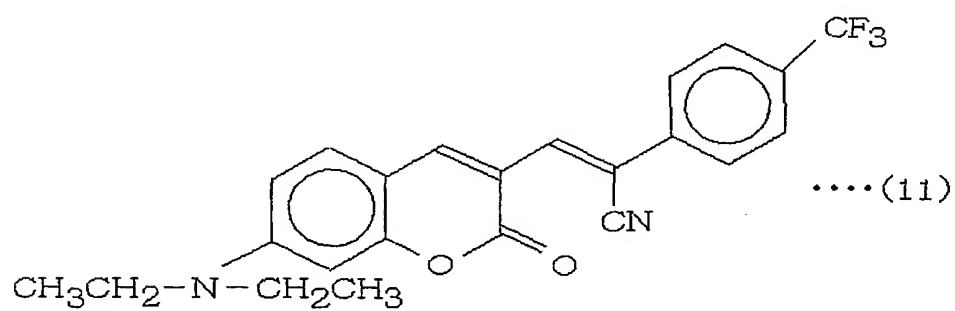
この発明に係る発光素子は、例えば一般に直流駆動型の素子として使用することができ、また、パルス駆動型の素子及び交流駆動型の素子としても使用することができる。従来のナイルレッドはオレンジ色にしか発光しなかったが、この発明に係る発光素子は、ナイルレッド系赤色発光化合物を含有するので、深紅の赤に近い赤色を高輝度で発光する。

この発明に係る発光素子における発光層に発光物質として前記ナイルレッド系赤色発光化合物しか含まれていないのであれば、その発光層は赤色に発光する。この発光層に、ナイルレッド系赤色発光化合物と、青色発光化合物と、緑色発光化合物とが含まれていると、この発光層は白色に発光する。

前記青色発光化合物としては、ジフェニルビニルビフェノール系青色発光化合物、スチルベン系青色発光化合物等を挙げることができる。好適なジフェニルビニルビフェノール系青色発光化合物としては、一般式(10)で示されるDPVB<sub>i</sub>等を挙げることができる。



前記緑色発光化合物としては、クマリン系緑色発光化合物、インドフェノール系緑色発光化合物及びインジゴ系緑色発光化合物を挙げることができ、一般式（11）で示されるクマリン系緑色発光化合物が好適である。



この発明に係る発光素子を白色に発光させるには、発光層におけるナイルレッド系赤色発光化合物と青色発光化合物と緑色発光化合物との配合割合は、通常、

重量比で、5～200：10～100：50～20000であり、好ましくは10～100：50～500：100～10000である。

赤色に発光する素子及び白色に発光する発光素子は、蛍光灯等の照明装置、表示装置等に利用することができる。

#### (実施例1)

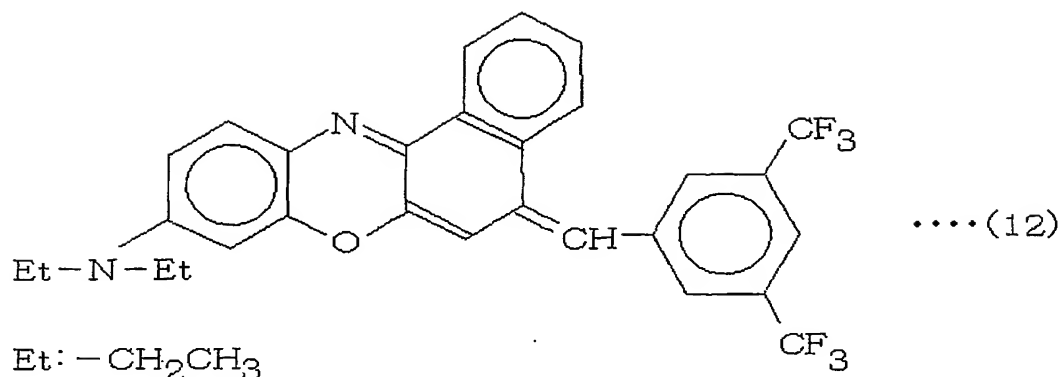
##### ナイルレッド系赤色発光化合物Aの合成

100mlのナスフラスコに、ナイルレッド0.50g (1.57mmol)、3,5-ビス(トリフルオロメチル)フェニルアセトニトリル0.40g (1.57mmol)、及び無水酢酸25mlを仕込んだ。ナスフラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで135℃にまで加熱し、4時間反応させた。エバポレータを用いて無水酢酸を溜去し、クロロホルムに溶解させた。このクロロホルム溶液を5%水酸化ナトリウム水溶液及び水の順に洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて30分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレータで濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体30mgを得た。合成された化合物の収率は12%であり、融点は257～260℃であった。この化合物の<sup>1</sup>H-NMR及びIRのスペクトルは図1及び図2に示された通りである。この化合物の元素分析結果は以下のとおりであった。これらの結果から、得られた化合物は、式(12)で示される化合物であると同定された。

##### 元素分析結果

実測値：C；66.03 H；4.31 N；5.16

計算値：C；65.91 H；4.20 N；5.30



(实施例 2)

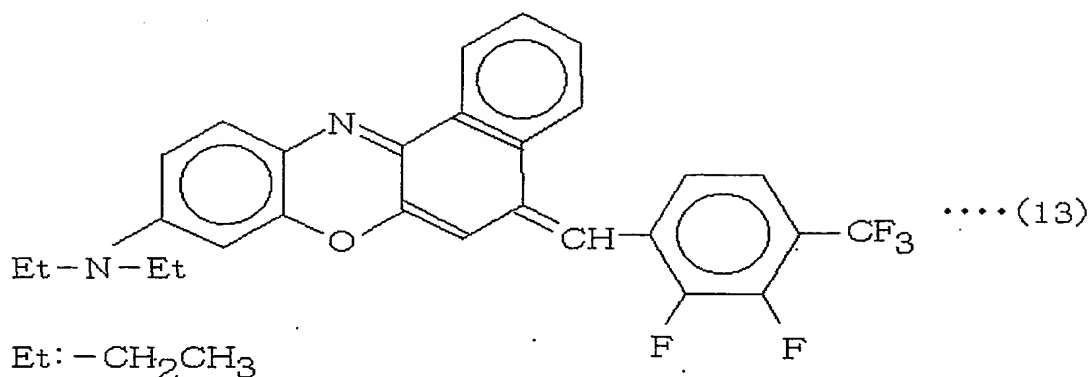
## ナイルレッド系赤色発光化合物Bの合成

100 ml のナスフラスコに、ナイルレッド 0.50 g (1.57 mmol)、2,3-ジフルオロ-4-(トリフルオロメチル)フェニルアセトニトリル 0.35 g (1.57 mmol)、及び無水酢酸 25 ml を仕込んだ。ナスフラスコ内の溶液をシリコンオイルバスで 135℃ にまで加熱し、3 時間反応させた。エバポレータを用いて無水酢酸を溜去し、クロロホルムに溶解させた。このクロロホルム溶液を 5% 水酸化ナトリウム水溶液及び水の順に洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて 30 分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレータで濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体 10 mg を得た。合成された化合物の収率は 6.4% であり、融点は 172~174℃ であった。この化合物の IR のスペクトルは図 3 に示された通りである。この化合物の元素分析結果は以下のとおりであった。これらの結果から、得られた化合物は、式 (13) で示される化合物であると同定された。

## 元素分析結果

実測値：C；67.90 H；4.23 N；5.65

計算値：C；67.74 H；4.26 N；5.64



### (実施例3)

5mlのメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール（以下においてPVKと称する。関東化学（株）製）70mg、2,5-ビス（1-ナフチル）-1,3,4-オキサジアゾール（以下においてBNDと称する。合成品）29mg、及びナイルレッド系赤色発光化合物A 1mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液は、超音波洗浄器（（株）エスエヌディ製、US-2）で超音波を20分間照射することにより、十分に均一なものにされた。ITO基板（50×50mm、三容真空工業（株）製）をアセトンで10分間超音波洗浄した後に2-プロパノールで10分間超音波洗浄し、窒素でブローして乾燥させた。その後、UV照射装置（（株）エム・ディ・エキシマ製、波長172nm）で30秒間UVを照射して洗浄した。スピンコータ（ミカサ（株）製、1H-D7）を用いて洗浄乾燥の終了したITO基板に、調製しておいた前記ナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を滴下し、回転数1,500rpm、回転時間3秒にてスピンコートして製膜した。製膜した基板を、50℃の恒温槽

中で30分乾燥させた後に、真空蒸着装置（大亜真空技研（株）製、VDS-M2-46型）でアルミ合金（Al:Li=99:1重量比、（株）高純度化学研究所製）電極を、 $4 \times 10^{-6}$  Torrで約1,500 Åの厚みに蒸着し、EL素子を製作した。

このEL素子は、（株）トプコン製のFast BM-7で徐々に電圧を上げながら輝度及び色度を測定した。結果を表2に示した。

#### （実施例4）

5mlのメスフラスコに、PVK 68mg、2-(4-tert-ブチルフェニル-5-(4-ピフェニリル)-1,3,4-オキサジアゾール（以下においてPBDと称する。）31.2mg、及びナイルレッド系赤色発光化合物A 0.8mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液につき前記実施例3と同様にしてEL素子を作成し、前記実施例3におけるのと同様にして輝度及び色度を測定した。結果を表2に示した。

#### （実施例5）

5mlのメスフラスコに、PVK 63.7mg、2,5-ビス（5'-tert-ブチル-2'-ベンゾキサゾリル）チオフェン（以下においてBBOTと称する。）35.5mg、及びナイルレッド系赤色発光化合物A 0.8mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を用いて前記実施例3と同様にしてEL素子を作成し、前記実施例3におけるのと同様にして輝度及び色度を測定した。結果を表2に示した。

#### （実施例6）

5mlのメスフラスコに、PVK 64.0mg、BBOT 35.6mg、及

ビニルレッド系赤色発光化合物A 0.4mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにニルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このニルレッド系赤色発光化合物含有溶液につき前記実施例3と同様にしてEL素子を作成し、前記実施例3におけるのと同様にして輝度及び色度を測定した。結果を表2に示した。

(比較例1)

5mlのメスフラスコに、PVK 68.2mg、PBD 31.3mg、及びニルレッド 0.5mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにニルレッド含有溶液を調製した。このニルレッド含有溶液につき前記実施例3と同様にしてEL素子を作成し、前記実施例3におけるのと同様にして輝度及び色度を測定した。結果を表2に示した。

【表2】

配合量 mg		実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例1
PVK		70.0	68.0	63.7	64.0	68.2
BND		29.0				
PBD			31.2			31.3
BBOT				35.5	35.6	
色素A		1.0	0.8	0.8	0.4	
ニルレッド						0.5
最高輝度cd/m <sup>2</sup>		2454.4	2215.0	2629.2	3475.6	2137.0
色度	X	0.6417	0.6307	0.6330	0.6278	0.5402
	Y	0.3477	0.3535	0.3610	0.3648	0.4324

(実施例7)

5mlのメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール（以下においてPVKと称

する。関東化学（株）製）70.1mg、2,5-ビス（1-ナフチル）-1,3,4-オキサジアゾール（以下においてBNDと称する。合成品）29.3mg、及びナイルレッド系赤色発光化合物A 0.61mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液は、超音波洗浄器（（株）エヌエヌディ製、US-2）で超音波を20分間照射することにより、十分に均一なものにされた。ITO基板（50×50mm、三容真空工業（株）製）をアセトンで10分間かけて超音波洗浄した後に2-プロパノールで10分間超音波洗浄し、窒素でブローして乾燥させた。その後に、UV照射装置（（株）エム・ディ・エキシマ製、波長172nm）で30秒間UVを照射して洗浄した。スピコート（ミカサ（株）製、1H-D7）を用いて洗浄乾燥の終了したITO基板に、調製しておいた前記ナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を滴下し、回転数1,500rpm、回転時間3秒にてスピコートして製膜した。製膜した基板を、50℃の恒温槽中で30分乾燥させた後に、真空蒸着装置（大亜真空技研（株）製、VDS-M2-46型）でアルミ合金（Al:Li=99:1重量比、（株）高純度化学研究所製）電極を、 $1 \times 10^{-6}$  Torrで約1,500Åの厚みに蒸着し、EL素子を製作した。

このEL素子につき、（株）トプコン製のFast BM-7で徐々に電圧を上げながら最高輝度及び色度を測定した。結果を表3に示した。

#### （実施例8）

5mlのメスフラスコに、PVK 70.1mg、BND 29.3mg、ナイルレッド系赤色発光化合物A 0.61mgを入れ、更にジクロロエタンを加えて全量が5mlになるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製する代わりに、5mlのメスフラスコに、PVK 69.9mg、BND 29.1mg、ルブレン 0.4mg及びナイルレッド系赤色発光化合物A 0.6mgを入れ、更にジクロロエタンを加えて全量が5mlになるようにナイルレッド系赤色



発光化合物含有溶液を調製したことの外は、前記実施例 7 と同様にして E L 素子を製作した。

前記実施例 7 と同様にして最高輝度及び色度を測定した。結果を表 3 に示した。

(実施例 9)

ナイルレッド系赤色発光化合物 A の代わりにナイルレッド系赤色発光化合物 B を使用した外は前記実施例 7 と同様にして E L 素子を製作した。この E L 素子につき、前記実施例 7 と同様にして輝度及び色度を測定した。その結果を表 3 に示した。

(実施例 10)

ナイルレッド系赤色発光化合物 C の合成

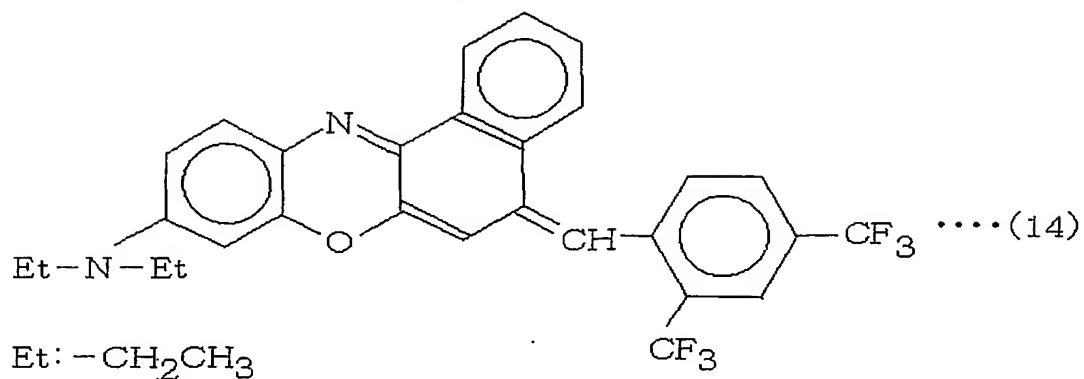
3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニルアセトニトリル 1. 57 mm o 1 の代わりに 2, 4-ビス(トリフルオロメチル)フェニルアセトニトリル 1. 57 mm o 1 を使用することの外は前記実施例 1 と同様にして式(14)で示されるナイルレッド系赤色発光化合物 C を合成した。

このナイルレッド系赤色発光化合物 C の  $^1\text{H-NMR}$  を図 6 に示した。このナイルレッド系赤色発光化合物の元素分析結果を以下に示す。

実測値: C; 66.13 H; 4.21 N; 5.18

計算値: C; 65.91 H; 4.20 N; 5.30

## 【化 3】



ナイルレッド系赤色発光化合物Aの代わりにナイルレッド系赤色発光化合物Cを使用した外は前記実施例7と同様にしてEL素子を製作した。このEL素子につき、前記実施例7と同様にして輝度及び色度を測定した。その結果を表3に示した。

【表 3】

		実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
重 量 / mg	PVK	70.1	69.9	70.1	70.1
	BND	29.3	29.1	29.3	29.3
	ルブレン		0.4		
	ナイルレッド系赤色発光化合物A	0.6	0.6		
	ナイルレッド系赤色発光化合物B			0.6	
	ナイルレッド系赤色発光化合物C				0.6
最高輝度 cd/m <sup>2</sup>		3006.0	2015.0	1349.0	2985.0
色 度	X	0.6248	0.6694	0.6294	0.6218
	Y	0.3453	0.3152	0.3458	0.3636

## 【0001】

## (実施例11)

前記実施例7と同様にして洗浄したITO基板を真空蒸着器にセットし、 $1 \times 10^{-6}$  torr以下の減圧下にN、N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(TPD)を60nmの厚みに蒸着し、次いでトリス(8-キノリナート)アルミニウム(Alq3)と1.7重量%になるように秤量されたナイルレッド系赤色発光化合物Aとを混合した混合物を前記TPD蒸着膜の表面に厚み31nmになるように蒸着し、最後に、アルミ電極を150nmの厚みに成るように蒸着することにより、EL素子を製作した。

## 【0002】

このEL素子につき、前記実施例7と同様にしてその最高輝度及び色度を測定した。結果を表4に示した。

## 【0003】

## (実施例12)

TPDの膜厚を70nmにし、Alq3にナイルレッド系赤色発光化合物Aを1.5重量%の割合に成るように混合して得られた混合物を23nmの厚みに成るように蒸着した外は前記実施例11と同様に実施してEL素子を製作した。

結果を表4に示した。

【表 4】

		実施例11	実施例12
膜厚	TPD	60	70
nm	Alq3 + ナイルレッド系赤色発光化合物A	31	23
配合	Alq3	98.5	99.4
比	ナイルレッド系赤色発光化合物A	1.5	0.6
最高輝度 $\text{cd/m}^2$		623.0	4427.0
色度	X	0.6536	0.6155
	Y	0.3184	0.3459

## 【0004】

## (実施例13)

5ml のメスフラスコに、ポリ（N-ビニルカルバゾール）（以下、PVKと称する。関東化学（株）製）70.0mg、2,5-ビス（1-ナフチル）-1,3,4-オキサジアゾール（以下、BNDと称する。ランカスター製）14.85mg、ナイルレッド系赤色発光化合物A 0.05mg、前記式（9）で示される構造式を有する緑色発光色素（色素B）0.10mg、前記式（8）で示される構造を有する青色発光色素（DPVBi）15.0mgを量り取り、ジクロロエタンを加えて5mlになるように溶液を調製した。溶液は、超音波を（株）エスエヌディ製の超音波洗浄器US-2で20分間掛けて、十分に溶解した。

## 【0005】

ITO基板を、アセトンで10分間超音波洗浄した後、IPAで10分間超音波洗浄し、窒素でブローして乾燥させた。乾燥後に、5分間かけてセン特殊光源（株）製のフォト・サフェイス・プロセッサPL16-110でUV洗浄を行った。洗浄乾燥の終わったITO基板を、ミカサ（株）製のスピンコーター1H-D7にセットし、調製しておいた溶液を滴下して製膜した。製膜の終わった基板は、50℃の恒温層中で30分乾燥させた後、大亜真空技研（株）製の高真空蒸着装置VDS-M2-46型でアルミ電極（Al:Li=99:1wt%（

株) 高純度化学研究所製) を、 $10^{-6}$  Torr 以下で約 150 nm 蒸着し、EL 素子を製作した。

製作した EL 素子は、(株) トプコン製 Fast BM-7 で光学特性を測定した。結果を表 4 に示した。表 4 に示されるように、この発明に係るナイルレッド系赤色発光化合物と緑色発光色素と青色発光色素とを組み合わせると白色を発光させることのできる EL 素子を完成することができた。

#### (実施例 14)

5 ml のメスフラスコに、PVK 70.1 mg、BND 14.85 mg、前記ナイルレッド系赤色発光化合物 A 0.04 mg、前記実施例 13 で使用されたのと同じ種類の緑色発光色素 0.10 mg、及び前記実施例 13 で使用されたのと同じ種類の青色発光色素 15.0 mg を量り取り、ジクロロエタンを加えて 5 ml になるように溶液を調製した。以下実施例 13 と同様にして EL 素子を製作し、光学特性を測定した。結果を表 5 に示した。表 5 に示されるように、この発明に係るナイルレッド系赤色発光化合物と緑色発光色素と青色発光色素とを組み合わせると白色を発光させることのできる EL 素子を完成することができた。

#### (実施例 15)

5 ml のメスフラスコに、PVK 70.0 mg、BND 20.0 mg、ナイルレッド系赤色発光化合物 A 0.02 mg、前記実施例 13 で使用されたのと同じ種類の緑色発光色素 0.03 mg、及び前記実施例 13 で使用されたのと同じ種類の青色発光色素 9.95 mg を量り取り、ジクロロエタンを加えて 5 ml になるように溶液を調製した。以下実施例 1 と同様にして素子を製作し、光学特性を測定した。結果を表 5 に示した。表 5 に示されるように、この発明に係るナイルレッド系赤色発光化合物と緑色発光色素と青色発光色素とを組み合わせると白色を発光させることのできる EL 素子を完成することができた。

【表 5】

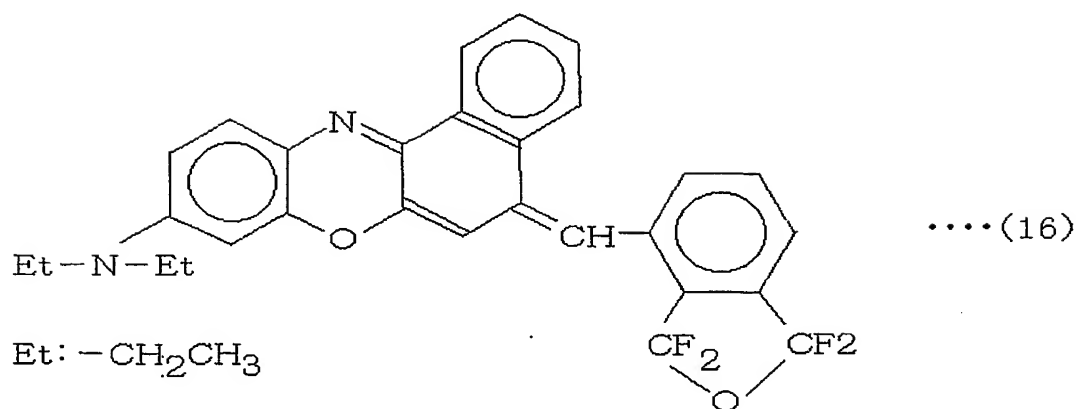
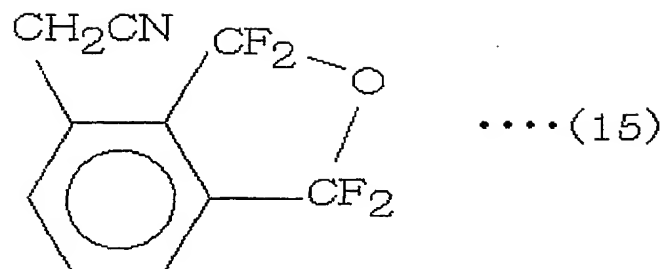
	実施例 13	実施例 14	実施例 15
PVK	70.0	70.1	70.0
BND	14.85	14.85	20.0
色素A	0.05	0.04	0.02
色素B	0.10	0.10	0.03
DPVB i	15.0	15.0	9.95
最高輝度 cd/m <sup>2</sup>	4867.0	3631.0	2819.0
色度 x	0.3788	0.3616	0.3101
y	0.3547	0.3399	0.3035

## (実施例 16)

100ml のナスフラスコに、ナイルレッド 0.92g (2.89mmol)、式(13)で示されるフッ素系フェニルアセトニトリル(1) 1.0g (4.33mmol)、及び無水酢酸 50mlを入れた。この溶液をシリコンオイルバスで135℃まで加熱し、1時間反応させた。エバポレーターを用いて無水酢酸を留去し、残渣をクロロホルムに溶解した。このクロロホルム溶液を5%水酸化ナトリウム水溶液、及び水の順で洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて30分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレーターで濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体40mgを得た。この青紫色固体の融点は235～240℃であった。この青紫色固体のNMRは図4に示した。この青紫色固体の元素分析結果を以下に示す。これらの結果から、この青紫色固体を式(14)で示される構造を有するナイルレッド系赤色発光化合物であると同定した。

実測値：C；68.90 H；4.28 N；5.49

計算値：C；68.77 H；4.38 N；5.53



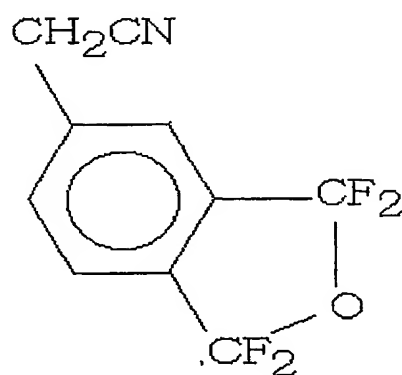
## (実施例 17)

100ml のナスフラスコに、ナイルレッド 0.92g (2.89mmol)、式(17)で示されるフッ素系フェニルアセトニトリル(2) 1.0g (4.33mmol)、及び無水酢酸 50mlを入れた。この溶液をシリコンオイル

バスで135℃まで加熱し、1.5時間反応させた。エバポレーターを用いて無水酢酸を留去し、残渣をクロロホルムに溶解した。この溶液を5%水酸化ナトリウム水溶液、及び水の順で洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて30分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレーターで濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体50mgを得た。この青紫色固体の融点は、250～252℃であった。この青紫色固体のNMRを図5に示した。この青紫色固体の元素分析結果を以下に示す。これらの結果からこの青紫色固体は式(18)で示される構造を有するナイルレッド系赤色発光化合物であると同定した。

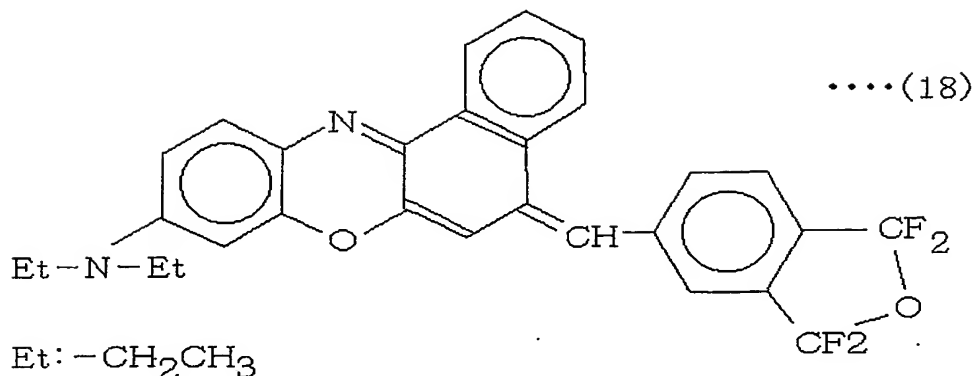
実測値：C；68.89 H；4.40 N；5.43

計算値：C；68.77 H；4.38 N；5.53



....(17)





5 ml のメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール（以下においてPVKと称する。関東化学（株）製）70.0 mg、BND 29.7 mg、及び前記式（16）で示されるナイルレッド系赤色発光化合物 0.3 mg を秤量し、ジクロロエタンを加えて5 ml になるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を用いて、前記実施例7におけるのと同様にして、EL素子を製作した。

このEL素子につき、（株）トプコン製のFast BM-7で徐々に電圧を上げながら最高輝度及び色度を測定した。電圧17 V及び電流9.07 mAで輝度が1575 Cd/m<sup>2</sup> 及びCIE色度でX座標が0.6552、電圧18 V及び電流11.84 mAで輝度が1815 Cd/m<sup>2</sup> 及びCIE色度でX座標が0.6563、電圧19 V及び電流13.98 mAで輝度が1702 Cd/m<sup>2</sup> 及びCIE色度でX座標が0.6559、電圧20 V及び電流16.84 mAで輝度が1505 Cd/m<sup>2</sup> 及びCIE色度でX座標が0.6517であった。

前記実施例7と同様にして洗浄したITO基板を真空蒸着器にセットし、1 × 10<sup>-6</sup> torr以下の減圧下にN、N'-ジフェニル-N,N'-ジ（m-トリル

）ーベンジジン（TPD）を60nmの厚みに蒸着し、次いでトリス（8ーキノリナート）アルミニウム（Alq3）と2重量%になるように秤量されたところの、式（18）で示される構造を有するナイルレッド系赤色発光化合物とを混合した混合物を前記TPD蒸着膜の表面に厚み31nmになるように蒸着し、最後に、アルミ電極を150nmの厚みに成るように蒸着することにより、EL素子を製作した。

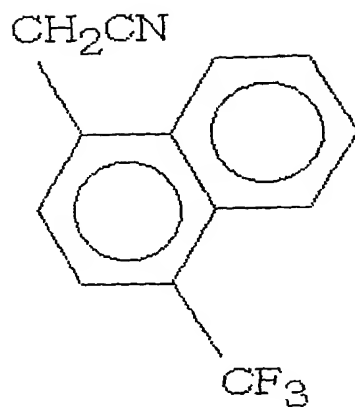
このEL素子につき、前記実施例7と同様にしてその輝度及び色度を測定した。電圧27V及び電流15.37mAで輝度が3660Cd/m<sup>2</sup>及びCIE色度でX座標が0.6266であった。

#### （実施例18）

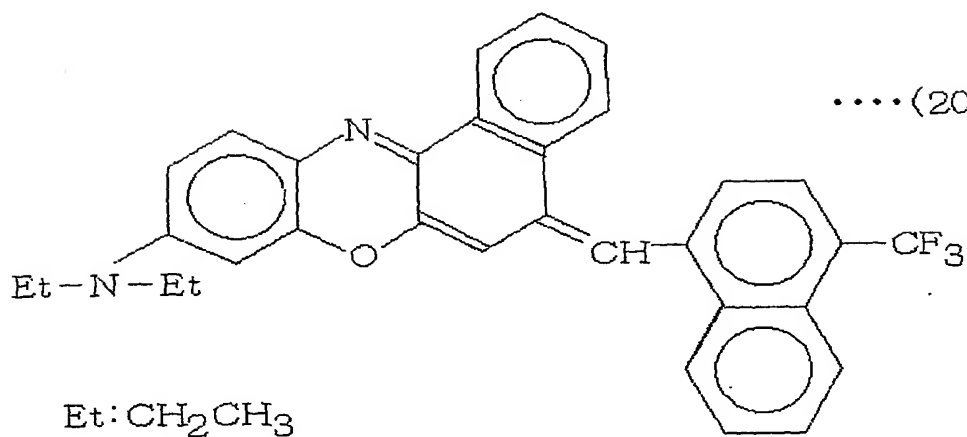
100mlのナスフラスコに、ナイルレッド 0.92g（2.89mmol）、式（19）で示されるフッ素系フェニルアセトニトリル（3） 1.0g（4.33mmol）及び無水酢酸 60mlを入れた。この溶液をシリコンオイルバスで135℃まで加熱し、3.5時間反応させた。エバポレーターを用いて無水酢酸を留去し、残渣をクロロホルムに溶解した。この溶液を5%水酸化ナトリウム水溶液及び水の順で洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて30分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレーターを用いて濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体10mgを得た。この青紫色固体のNMRを図7に示した。この青紫色固体の元素分析結果を以下に示した。これらの結果から、この青紫色固体を式（20）で示される構造を有するナイルレッド系赤色発光化合物であると同定した。

実測値：C；75.19 H；5.01 N；5.43

計算値：C；75.28 H；4.94 N；5.49



.....(19)



.....(20)

### 〈実施例 19〉

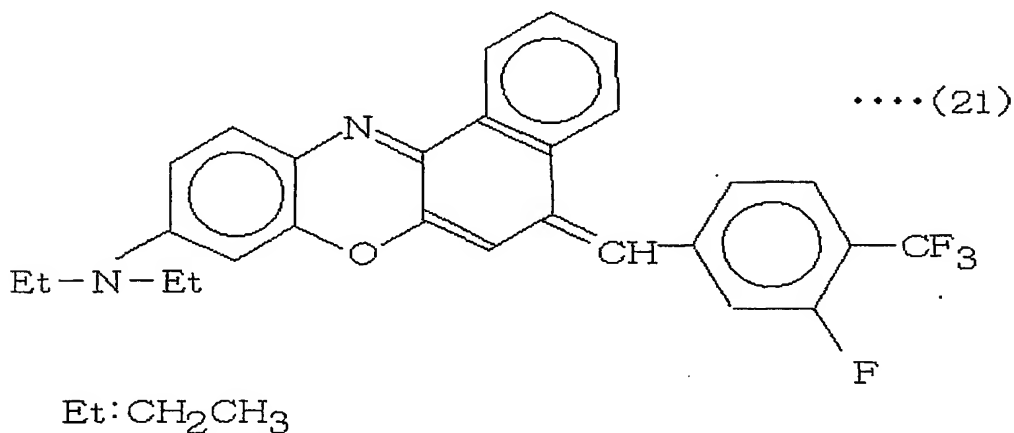
100ml のナスフラスコに、ナイルレッド 1.04g (3.28mmol)、3-フルオロ-4-(トリフルオロメチル)フェニルアセトニトリル 1.0g (4.92mmol) 及び無水酢酸 50ml を入れた。この溶液をシリコンオイルバスで135℃まで加熱し、2.5時間反応させた。エバポレーターで

無水酢酸を留去し、残渣をクロロホルムに溶解した。この溶液を5%水酸化ナトリウム水溶液及び水の順で洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて30分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレーターで濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体40mgを得た。青紫色固体の融点は215～220℃であった。青紫色固体のNMRを図8に示した。この青紫色固体の元素分析結果を以下に示した。これらの結果から、この青紫色固体は、式(21)で示される構造を有するナイルレッド系赤色発光化合物であると同定された。

実測値：C；70.19 H；4.77 N；5.83

計算値：C；70.29 H；4.63 N；5.85

【化4】



5mlのメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール（以下においてPVKと称する。関東化学（株）製）70.0mg、BND 29.8mg、及び前記式(20)で示されるナイルレッド系赤色発光化合物 0.2mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるようにナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を調製した。このナイルレッド系赤色発光化合物含有溶液を用いて、前記実施例7

におけるのと同様にして、EL素子を製作した。

このEL素子につき、(株)トプコン製のFast BM-7で徐々に電圧を上げながら最高輝度及び色度を測定した。電圧16V及び電流6.16mAで輝度が $1087\text{ Cd/m}^2$ 及びCIE色度でX座標が0.6776、電圧17V及び電流9.32mAで輝度が $1444\text{ Cd/m}^2$ 及びCIE色度でX座標が0.6780、電圧18V及び電流12.71mAで輝度が $1622\text{ Cd/m}^2$ 及びCIE色度でX座標が0.6787、電圧19V及び電流15.73mAで輝度が $1455\text{ Cd/m}^2$ 及びCIE色度でX座標が0.6790、電圧20V及び電流18.28mAで輝度が $1120\text{ Cd/m}^2$ 及びCIE色度でX座標が0.6710であった。

前記実施例7と同様にして洗浄したITO基板を真空蒸着器にセットし、 $1 \times 10^{-6}\text{ torr}$ 以下の減圧下にN、N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(TPD)を60nmの厚みに蒸着し、次いでトリス(8-キノリナート)アルミニウム(Alq3)と1.7重量%になるように秤量されたところの、式(20)で示される構造を有するナイルレッド系赤色発光化合物とを混合した混合物を前記TPD蒸着膜の表面に厚み31nmになるように蒸着し、最後に、アルミ電極を150nmの厚みに成るように蒸着することにより、EL素子を製作した。

このEL素子につき、前記実施例7と同様にしてその輝度及び色度を測定した。電圧27V及び電流18.53mAで輝度が $6043\text{ Cd/m}^2$ 及びCIE色度でX座標が0.6326であった。

#### (実施例20)

##### <6-アミノ-3-(ジイソプロピルアミノ)フェノールの合成>

500mlの3つ口フラスコに、塩化スズ二水和物 26g (115mmol)

及び濃塩酸 28 ml を入れ、加熱して沸騰させた。ここに 5-（ジイソプロピルアミノ）-2-ニトロフェノール 5.5 g (23.1 mmol) の酢酸溶液 60 ml を滴下し、滴下終了後に、還流温度で 1 時間反応させた。室温まで冷却し、水及び酢酸を完全に留去した。残渣を水 200 ml に溶解し、5% 水酸化ナトリウム水溶液で pH 3~4 にし、析出した固体を濾別した。濾液を濃縮して析出した固体をエーテル洗浄、真空乾燥して肌色固体 16.9 g (塩を含有している) を得た。この肌色固体の NMR チャートを図 9 に示した。この肌色固体を、6-アミノ-3-（ジイソプロピルアミノ）フェノールと同定した。

#### <ナイルレッド誘導体の合成>

500 ml のナスフラスコに前記 6-アミノ-3-（ジイソプロピルアミノ）フェノール 16.9 g、2-ヒドロキシ-1,4-ナフトキノン 4.0 g (23.1 mmol)、エタノール 150 ml、及び沸騰石を入れて、還流下で 21 時間反応させた。反応液をエバポレーターで濃縮し、10% 水酸化ナトリウム水溶液 200 ml でアルカリ性にし、クロロホルムで抽出し、水洗した。無水硫酸ナトリウムで脱水後、クロロホルムを留去し、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、目的のナイルレッド誘導体 0.50 g を得た。このナイルレッド誘導体の NMR チャートを図 10 に示した。

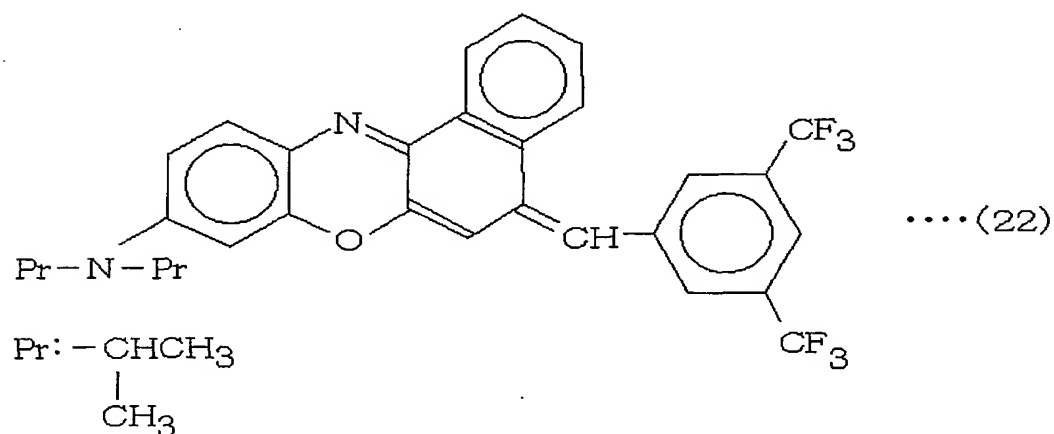
#### <ナイルレッド系赤色化合物の合成>

100 ml ナスフラスコに、前記ナイルレッド誘導体 0.46 g (1.33 mmol)、3,5-ビス（トリフルオロメチル）フェニルアセトニトリル 0.50 g (1.99 mmol)、及び無水酢酸 50 ml を入れ、この溶液をシリコンオイルバスで 135℃ まで加熱し、2 時間反応させた。エバポレーターを用いて無水酢酸を留去し、残渣をクロロホルムに溶解した。この溶液を 5% 水酸化ナトリウム水溶液及び水の順で洗浄し、硫酸ナトリウムを加えて 30 分間静置し、脱水した。この溶液をエバポレーターで濃縮し、得られた固体をシリカゲル、ベンゼンを用いたカラムクロマトグラフィーで精製し、青紫色固体 14 mg を得

た。この青紫色固体の融点は183～185℃であった。この青紫色固体のNMRを図11に示した。この青紫色固体の元素分析結果を以下に示した。これらの結果から、この青紫色固体は式(22)で示されるナイルレッド系赤色発光化合物であると、同定された。

実測値：C；67.02 H；4.77 N；5.13

計算値：C；66.90 H；4.71 N；5.03



#### 産業上の利用分野

この発明によると、従来得ることのできなかつた、より深紅に近いピーク波長を有する赤色の発光が高輝度で可能な、新規物質であるところの、熱及び光に安定なナイルレッド系赤色発光化合物を提供することができる。

この発明によると、白色に発光可能な素子を製造することのできる新規なナイルレッド系赤色発光化合物を提供することができる。

この発明によると、前記新規なナイルレッド系赤色発光化合物を簡単に製造することのできる製造方法を提供することができる。

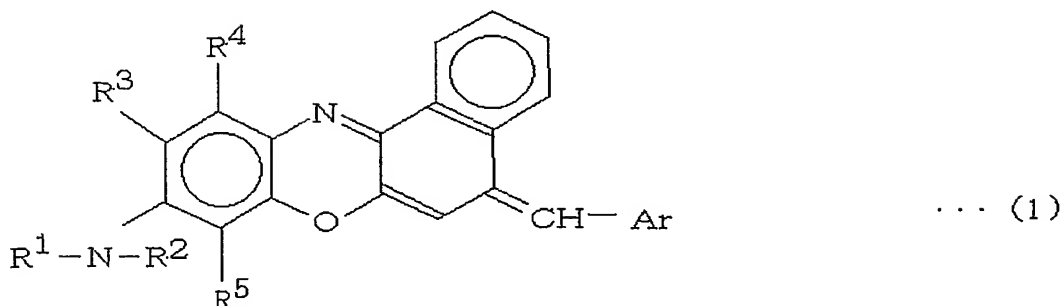
この発明によると、高輝度で深紅に近い赤色に発光するEL素子を提供することができる。



## 請求の範囲

1. 下記一般式(1)で示される構造を有することを特徴とするナイルレッド系赤色発光化合物。

【化5】



(但し、式中、 $R^1$ は、炭素数1～5の低級アルキル基を示し、また、 $R^1$ は $R^3$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^6\text{R}^7-$ (ただし、 $-\text{CR}^6\text{R}^7-$ における炭素はベンゼン環に結合し、 $R^6$ 及び $R^7$ は水素原子又は炭素数1～5の低級アルキル基を示し、 $R^5$ および $R^6$ は、同一であっても相違していても良い。)を形成する。

$R^2$ は、炭素数1～5の低級アルキル基を示し、また、 $R^2$ は $R^5$ と共同して $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{CR}^8\text{R}^9-$ (ただし、 $-\text{CR}^8\text{R}^9-$ における炭素はベンゼン環に結合し、 $R^8$ 及び $R^9$ は水素原子又は炭素数1～5の低級アルキル基を示し、 $R^8$ および $R^9$ は、同一であっても相違していても良い。)を形成する。

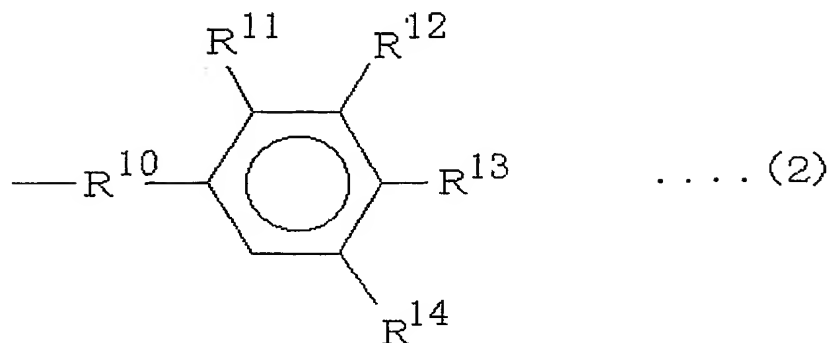
$R^3$ は、水素原子、 $R^1$ と共同して形成される前記結合、又は、 $R^4$ と共同して隣接するベンゼン環を含んで形成されてなるナフタレン環を示す。

$R^4$ は、水素原子、又は $R^3$ と共同して隣接するベンゼン環を含んで形成されてなるナフタレン環を示す。

$R^5$ は、水素原子、又は前記 $R^2$ と共同して形成される前記結合を示す。

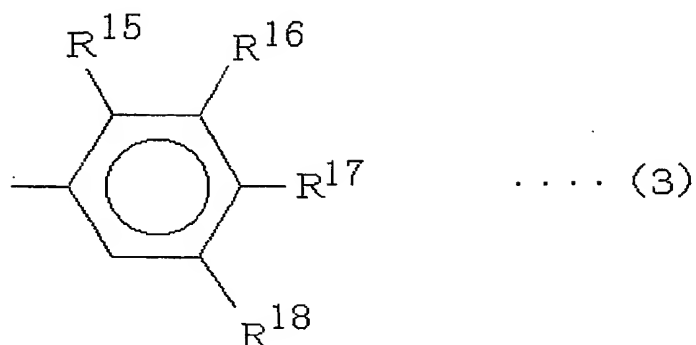
Arは、一般式(2)、(4)及び(5)のいずれかを示す。

【化6】



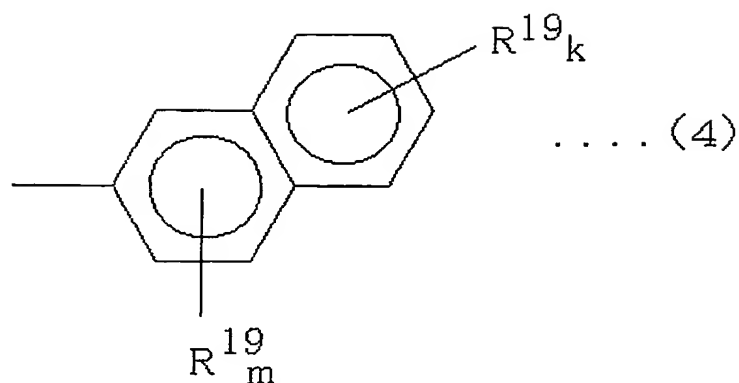
(但し、R<sup>10</sup>は、炭結合又はメチレン基を示す。R<sup>11</sup>は、水素原子、又はR<sup>12</sup>と共同して形成される-CF<sub>2</sub>-O-CF<sub>2</sub>-を示す。R<sup>12</sup>は、フッ素原子、シアノ基、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基、前記R<sup>11</sup>と共同して形成される-CF<sub>2</sub>-O-CF<sub>2</sub>-、又はR<sup>13</sup>と共同して形成される-CF<sub>2</sub>-O-CF<sub>2</sub>-を示す。R<sup>13</sup>は、水素原子、シアノ基、フッ素原子、炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基、前記R<sup>12</sup>と共同して形成される-CF<sub>2</sub>-O-CF<sub>2</sub>-、又は一般式(3)で示される基を示す。R<sup>14</sup>は、R<sup>13</sup>が水素原子であるときには水素原子又は炭素数1～5のフッ素原子含有低級アルキル基を示し、R<sup>13</sup>が水素原子以外の基であるときには水素原子を示す。)

【化 7】



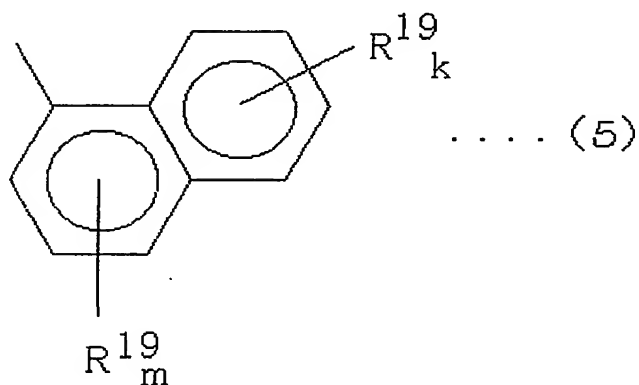
(但し、 $R^{15}$  は、水素原子、又は  $R^{16}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-$   $CF_2-$  を示す。 $R^{16}$  は、フッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基、前記  $R^{15}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  、又は  $R^{17}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。 $R^{17}$  は、水素原子、シアノ基、フッ素原子、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基、前記  $R^{16}$  と共同して形成される  $-CF_2-O-CF_2-$  を示す。 $R^{18}$  は、 $R^{17}$  が水素原子であるときには水素原子又は炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示し、 $R^{17}$  が水素原子以外の基であるときには水素原子を示す。)

【化 8】



(但し、 $R^{14}$  はフッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示す。 $k$  は 1～4 の整数を示し、 $m$  は 1～3 の整数を示す。 $m$  と  $k$  との合計個数の  $R^{14}$  は同一であっても相違していても良い。)

【化 9】

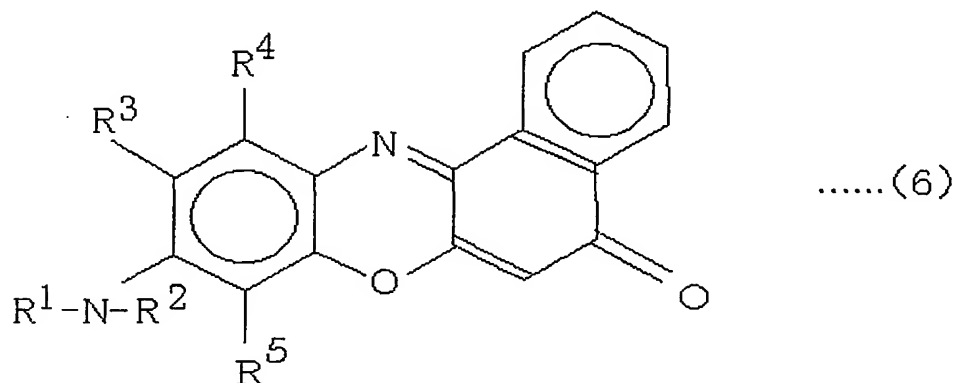


(但し、 $R^{19}$  はフッ素原子、シアノ基、炭素数 1～5 のフッ素原子含有低級アルキル基を示す。 $k$  は 1～4 の整数を示し、 $m$  は 1～3 の整数を示す。 $m$  と  $k$  との合計個数の  $R^{19}$  は同一であっても相違していても良い。)

2. 一般式 (6) で示されるナイルレッド系色素化合物と一般式 (7) で示さ

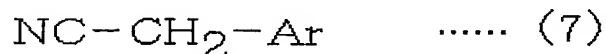
れる電子吸引性芳香族系アセトニトリルとを反応させることを特徴とする前記一般式（１）で示されるナイルレッド系赤色発光化合物の製造方法。

【化１０】



（但し、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  及び  $R^6$  は、前記請求項 1 におけるのと同様の意味を示す。）

【化１１】



（但し、Ar は、前記請求項 1 におけるのと同様の意味を示す。）

3. 一対の電極間に、前記一般式（１）で示されるナイルレッド系赤色発光化合物を含有する発光層を設けてなることを特徴とする発光素子。

4. 一対の電極における陽極と前記発光層との間にホール輸送層が介装されて成る前記請求項 3 に記載の発光素子。

5. 前記発光層がナイルレッド系赤色発光化合物とホスト色素とを含有して成る前記請求項 4 に記載の発光素子。
6. 前記発光層及びホール輸送層が蒸着法により形成されて成る前記請求項 4 又は 5 に記載の発光素子。
7. 前記発光層が前記ナイルレッド系赤色発光化合物と電子輸送性物質とホール輸送性高分子とを含有して成る前記請求項 3 に記載の発光素子。
8. 前記発光層が塗布法により形成されて成る前記請求項 7 に記載の発光素子。

☒ 1

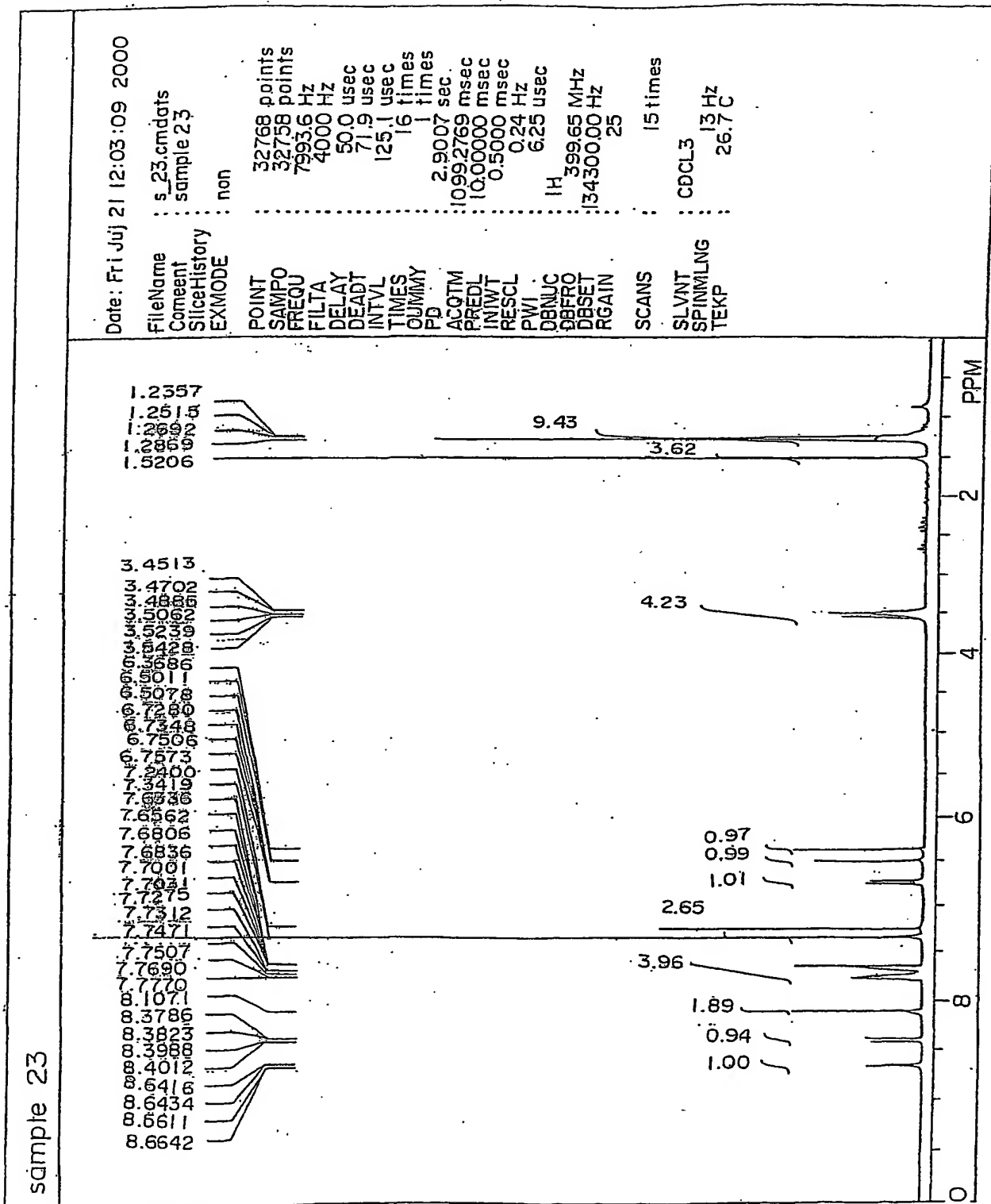
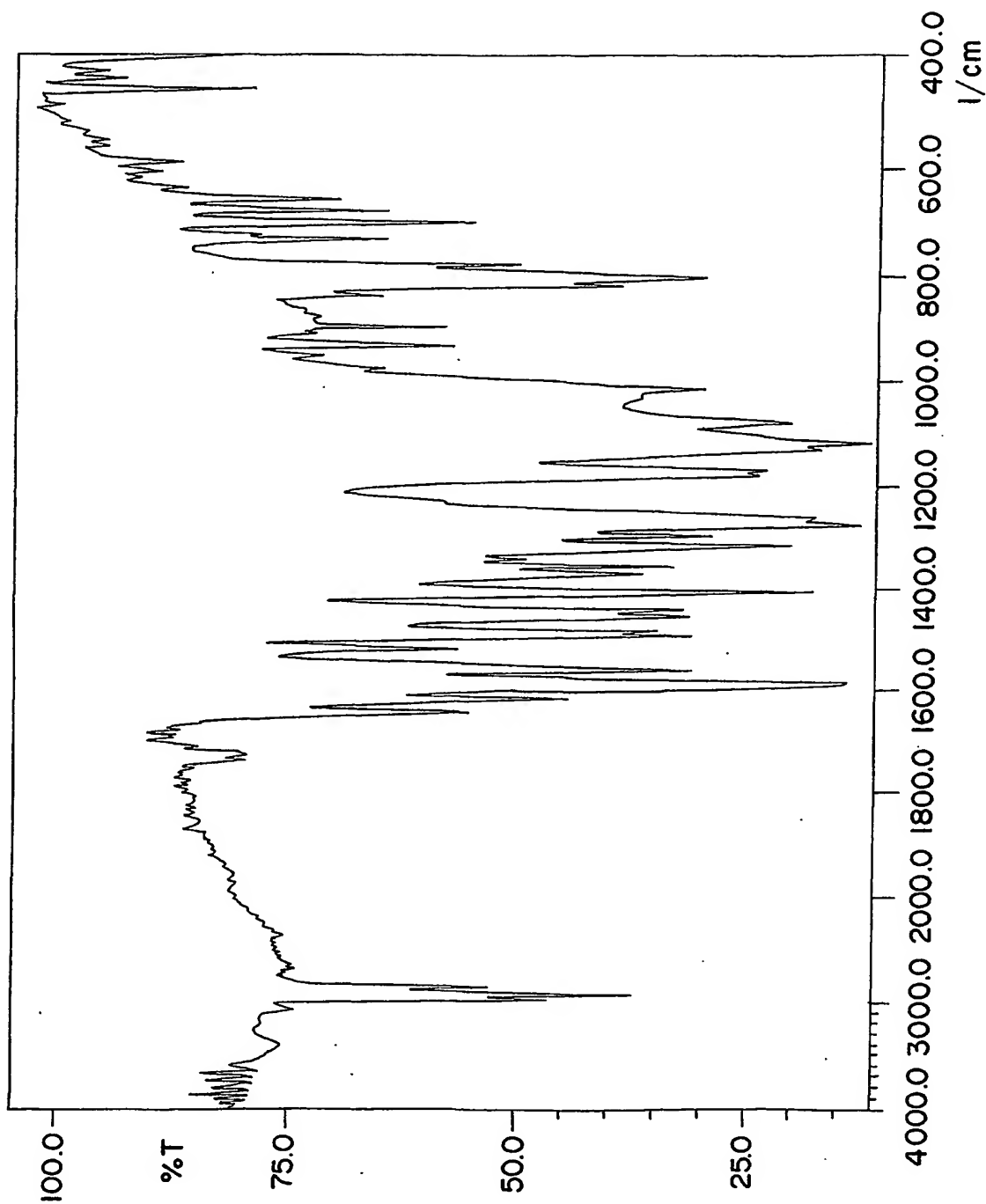


図 2

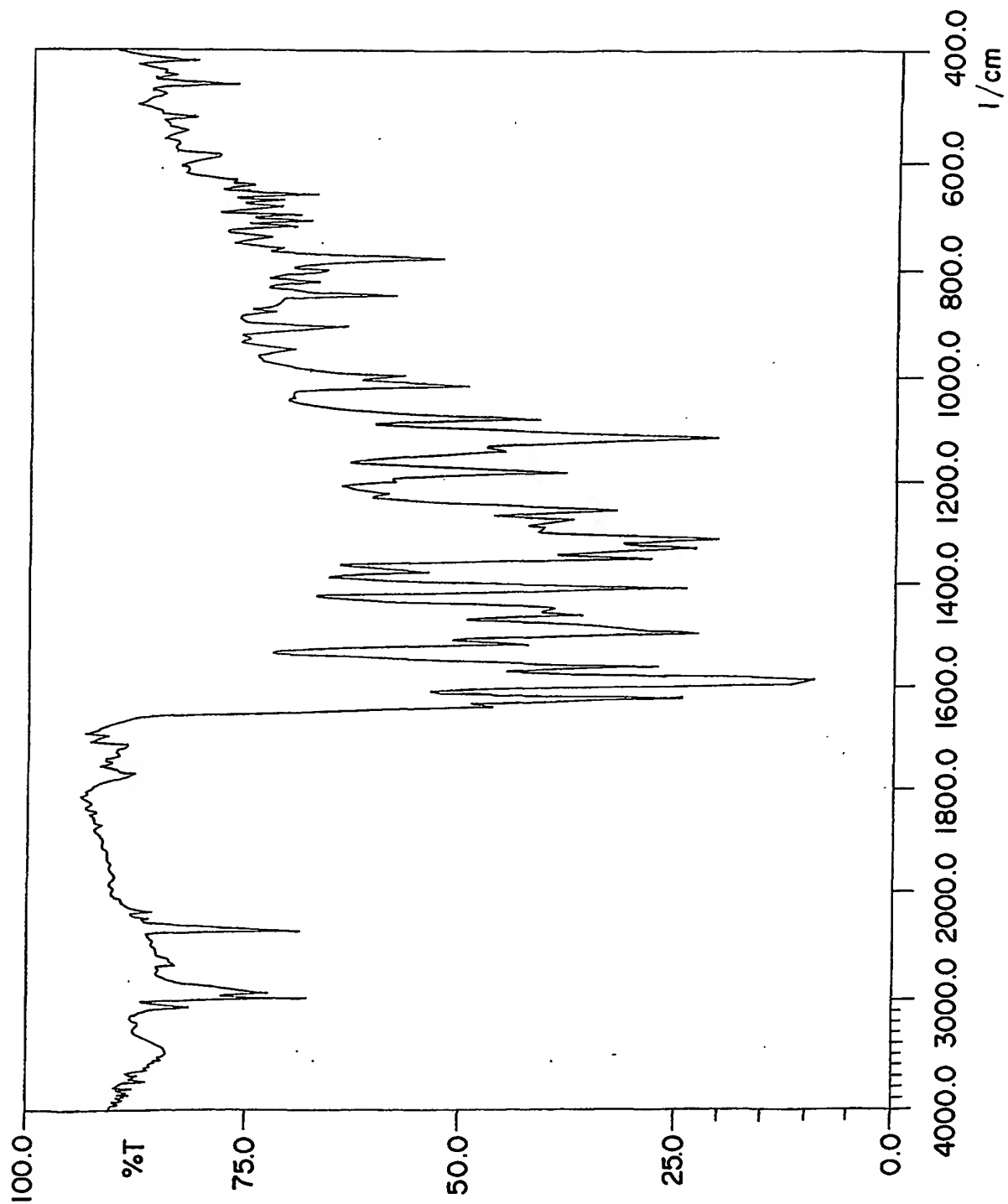


2/11

差替え用紙(規則26)



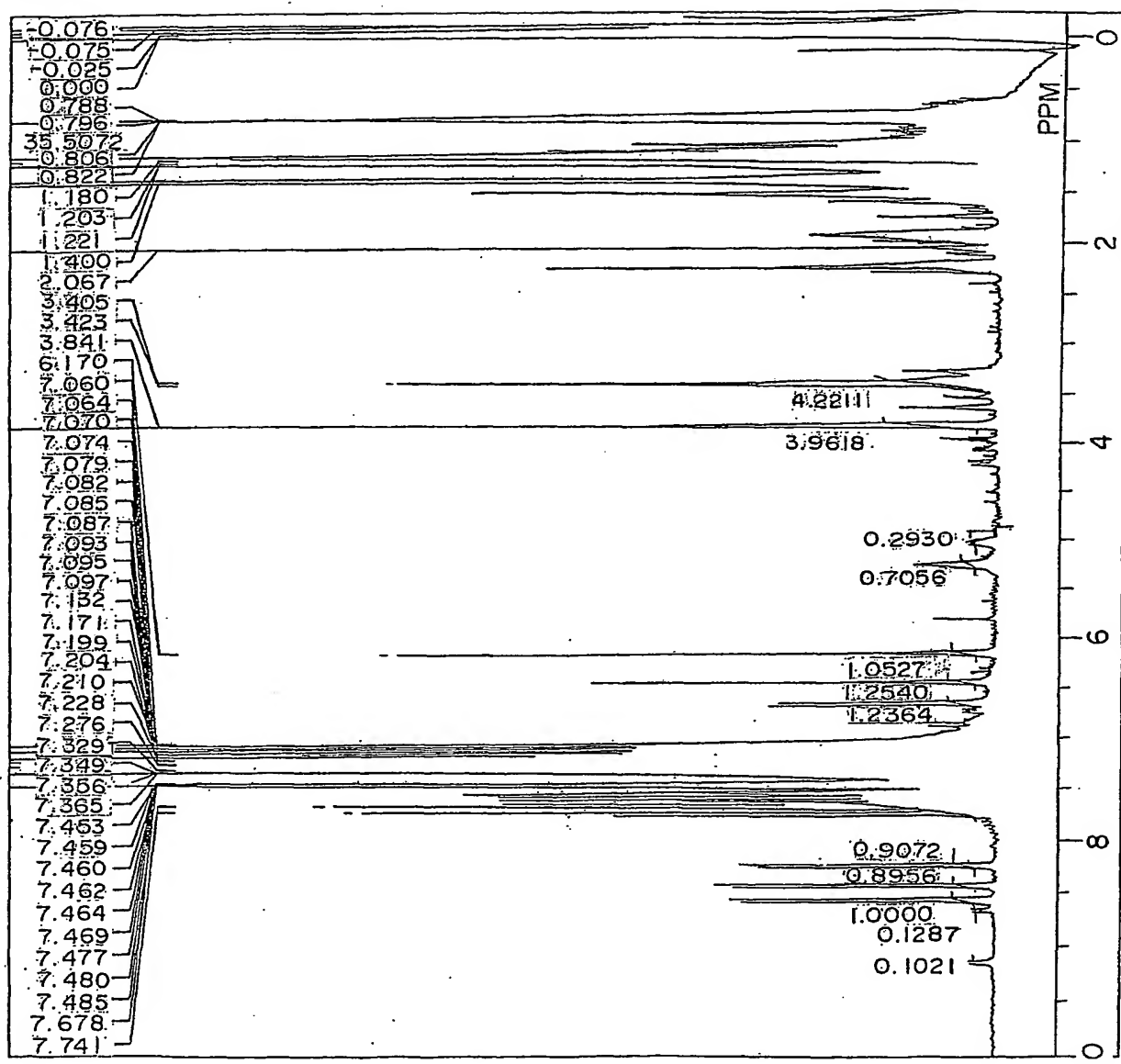
図 3



3/11

差替え用紙 (規則26)

図 4



4/11

差替え用紙 (規則26)

図 5

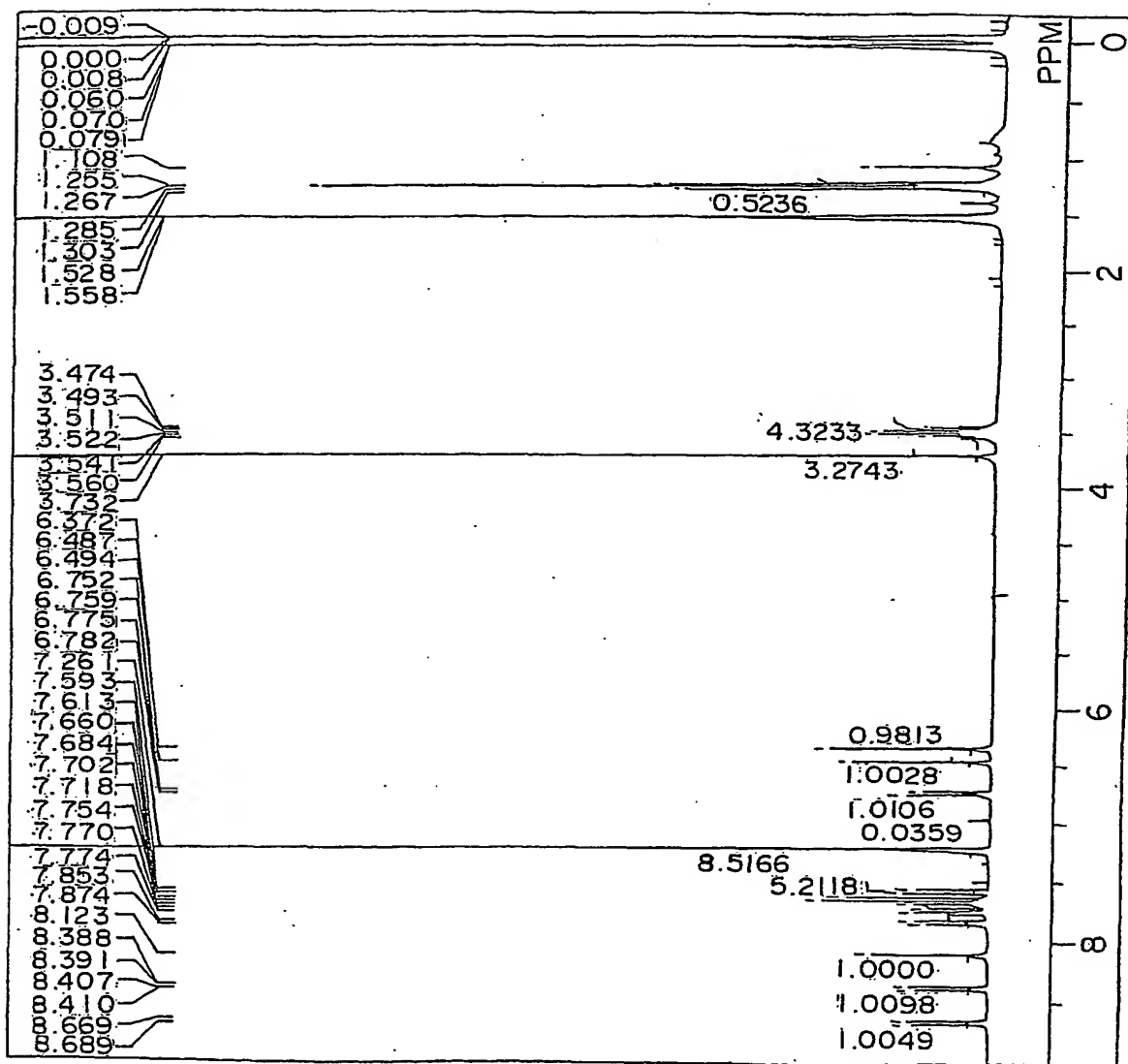
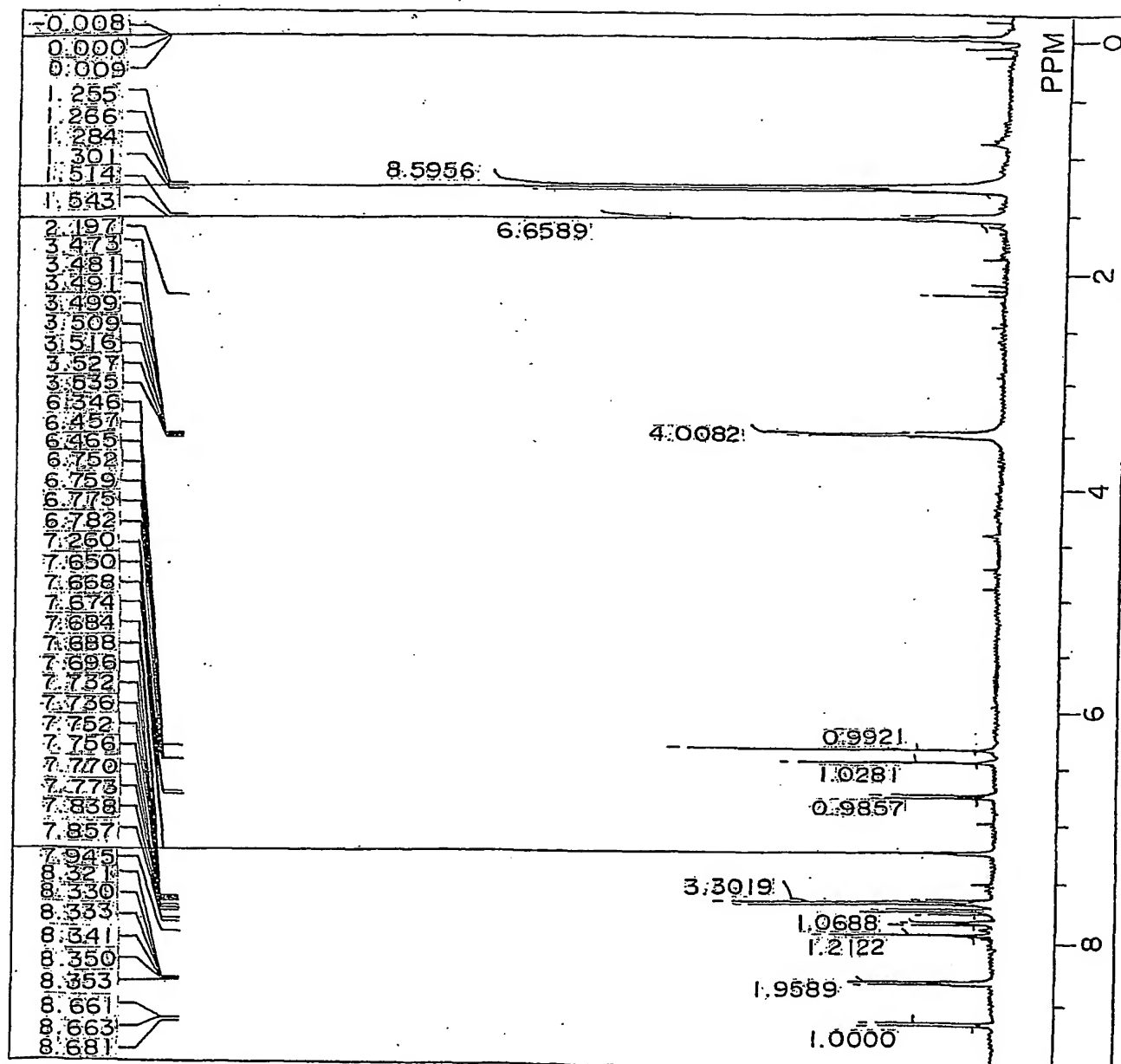
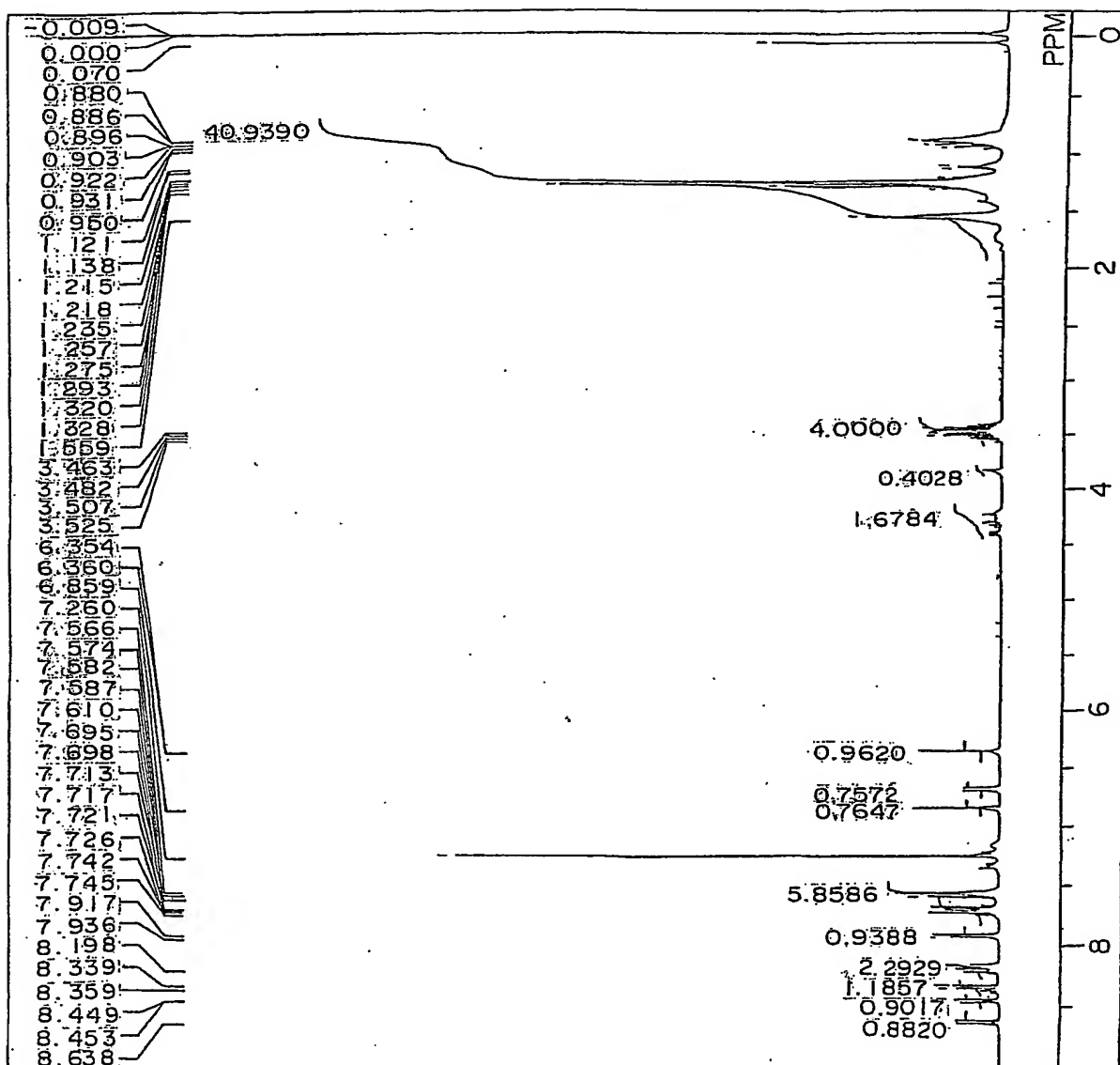


図 6



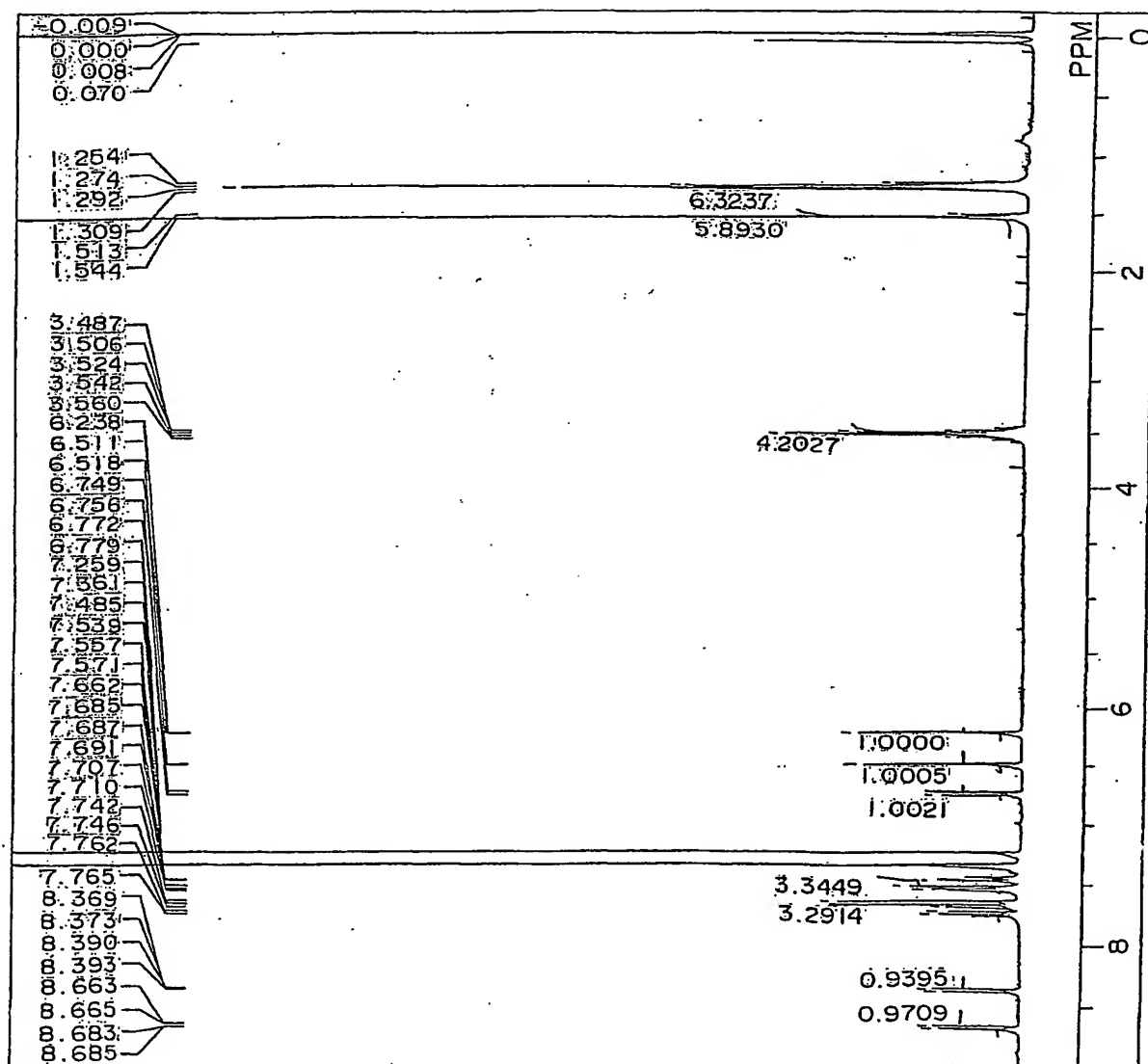
6/11

図 7



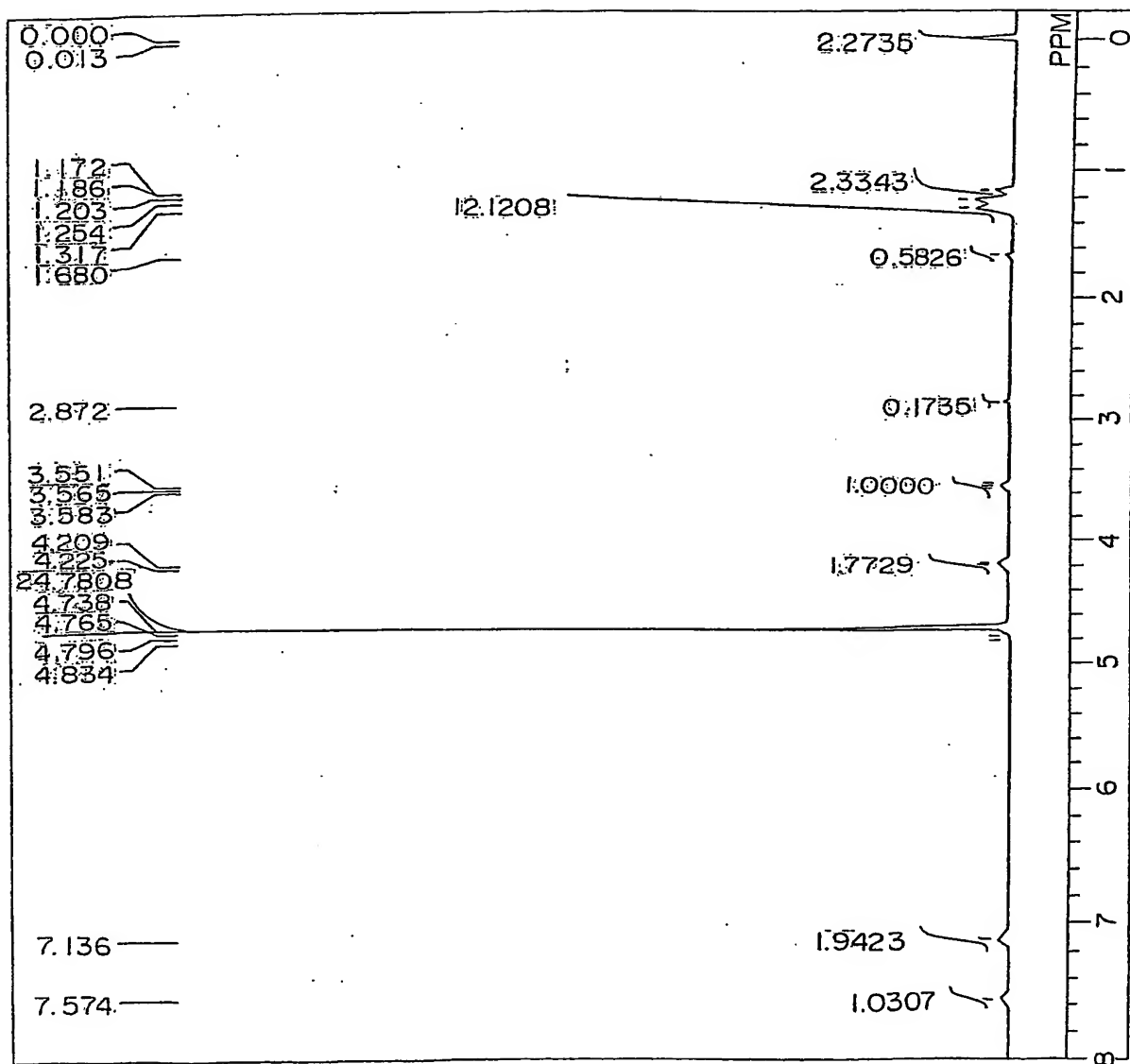
7/11

図 8



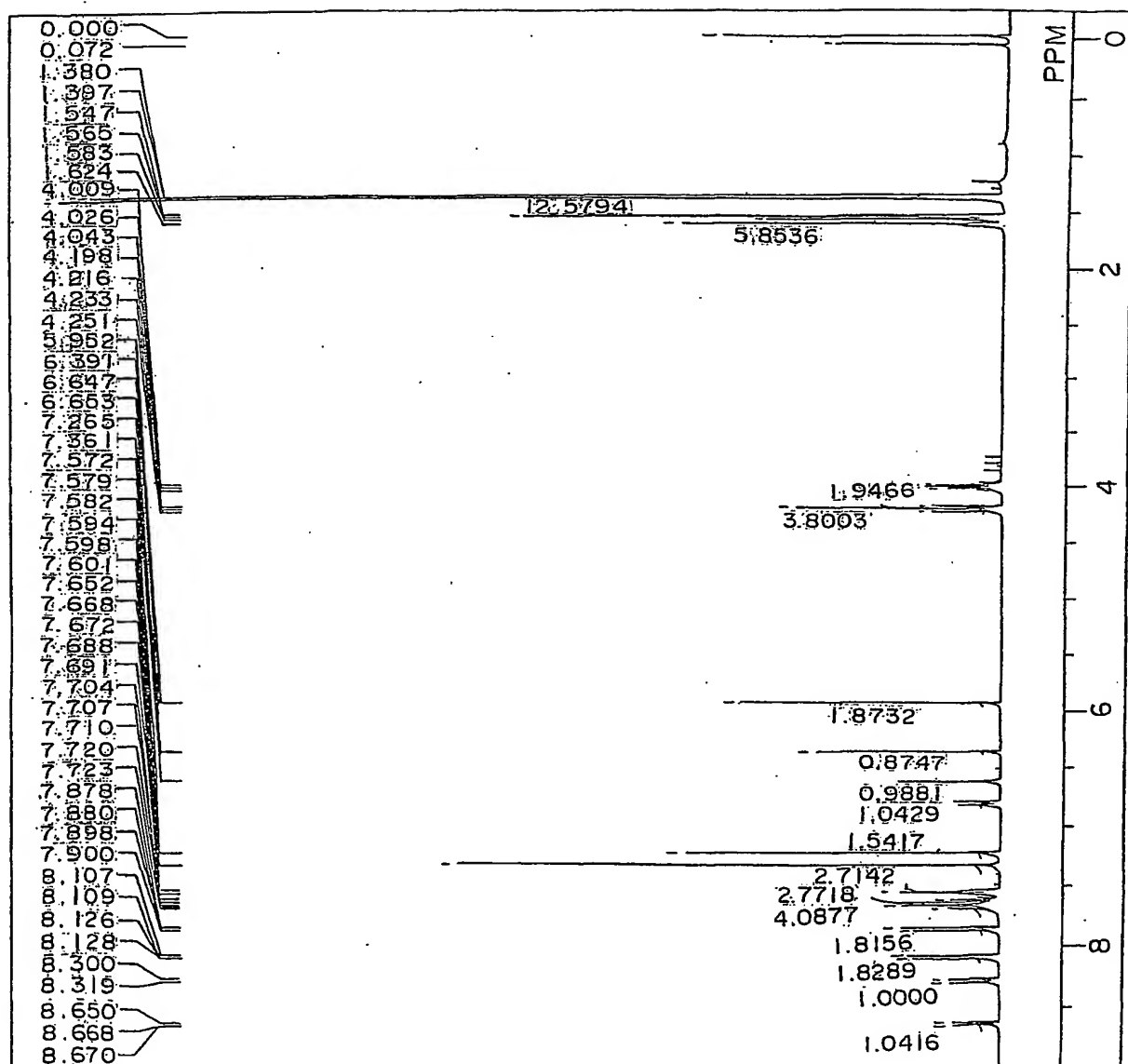
8/11

図 9



9/11

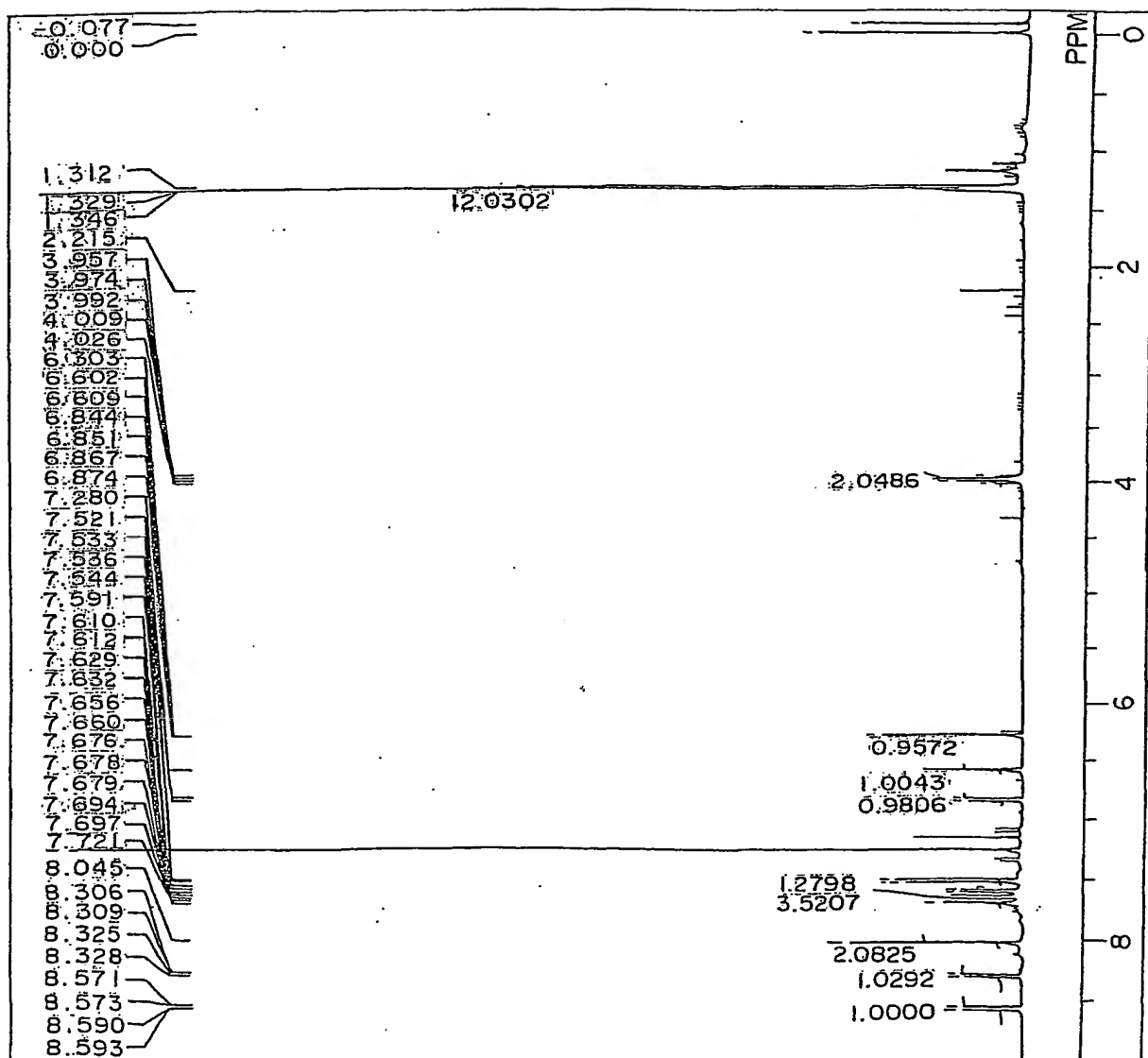
図 10



10/11



図 11



11/11

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/05671

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C07D265/34, C09K11/06, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C07D265/34, C09K11/06, H05B33/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAOLD (STN), CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2000-80088 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 21 March, 2000 (21.03.00) (Family: none)	1-8
A	JP 7-82495 A (NOF Corporation), 28 March, 1995 (28.03.95) (Family: none)	1-8
A	US 4962197 A (Rowland Institute for Science), 09 October, 1990 (09.10.90) (Family: none)	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
22 August, 2001 (22.08.01)

Date of mailing of the international search report  
04 September, 2001 (04.09.01)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C07D265/34, C09K11/06, H05B33/14

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C07D265/34, C09K11/06, H05B33/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
CAOLD (STN), CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2000-80088 A (富士写真フイルム株式会社) 21. 3月. 2000 (21. 03. 00) (ファミリーなし)	1-8
A	JP 7-82495 A (日本油脂株式会社) 28. 3月. 1995 (28. 03. 95) (ファミリーなし)	1-8
A	US 4962197 A (Rowland Institute for Science) 9. 10月. 1990 (09. 10. 90) (ファミリーなし)	1-8

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22. 08. 01

国際調査報告の発送日

04.09.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

富永 保



4 P 9840

電話番号 03-3581-1101 内線 3490